

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-215902

(43)Date of publication of application : 04.08.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 11-017901

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

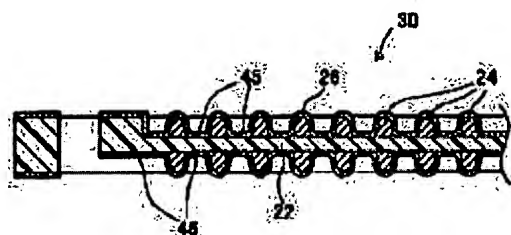
(22)Date of filing : 27.01.1999

(72)Inventor : KINOSHITA KATSUHIKO

**(54) GAS SEPARATOR FOR FUEL CELL, FUEL CELL AND MANUFACTURE OF GAS SEPARATOR FOR FUEL CELL****(57)Abstract:**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To form an uneven shape for forming a gas passage on a thin plate while keeping a sufficient degree of freedom of design relating to the uneven shape without requiring a process for pressing a metal plate.

**SOLUTION:** This separator 30 is a member composed by forming passage forming parts 24 on a board part 22 and constitutes a fuel cell by being laminated along with a gas diffusion electrode and an electrolyte film. The board part 22 is formed by pressing a metal plate, and recessed parts 45, 46 are formed on its surface. The passage forming parts 24 are formed by heaping and fixing a predetermined quantity of a heated and molten metal on the recessed parts 45, 46 of the board part 22. In this fuel cell composed by using the separator 30, the gas distributed to each cell is kneaded by the passage forming parts 24 while passing the passages formed between the recessed parts 45, 46 and the gas diffusion electrode.



**\* NOTICES \***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1]Laminate with a component containing an electrolyte layer and an electrode, constitute a fuel cell, and within this fuel cell, A board part which consists of a plate-like member which is a gas separator for fuel cells which forms a channel of gas between adjoining components, and has conductivity with uneven shape formed in the surface, A gas separator for fuel cells provided with an uneven shape formation part which forms said uneven shape on this board part by heights which carry out dishing-up adherence of the substance which has conductivity directly.

[Claim 2]The gas separator for fuel cells according to claim 1 with which said heights have a predetermined void in the inside.

[Claim 3]The gas separator for fuel cells according to claim 1 currently formed on said board part in said heights at mesh state.

[Claim 4]The gas separator for fuel cells according to claim 1 in which said heights are porosity.

[Claim 5]A gas separator for fuel cells which is the gas separator for fuel cells according to claim 1, and is formed in accordance with said predetermined direction at a line on said board part in order that said heights may draw said gas which passes through said channel in the predetermined direction.

[Claim 6]A fuel cell which is a fuel cell which receives supply of gas and acquires electromotive force according to electrochemical reaction, and there is no Claim 1 and is provided with a gas separator for fuel cells of a description 5 either.

[Claim 7]A manufacturing method of a gas separator for fuel cells which is laminated with a component containing an electrolyte layer and an electrode, constitutes a fuel cell, and forms a channel of gas between adjoining components with uneven shape formed in the surface within a fuel cell characterized by comprising the following.

(a) A process of preparing a board part which consists of a plate-like member which has conductivity.

(b) A process of dishing up directly a conductive substance which carried out melting on said board part, adhering, and forming said uneven shape.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**DETAILED DESCRIPTION**

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention about the manufacturing method of the gas separator for the gas separator for fuel cells, a fuel cell, and fuel cells in detail, In the fuel cell which carries out the plural laminates of the single cell, and constitutes it, it is provided between the adjoining single cells, and form a fuel gas flow route and an oxidizing gas passage between the adjoining components, and. It is related with the manufacturing method of the fuel cell using the gas separator for fuel cells which separates fuel gas and oxidizing gas, and this gas separator, and the gas separator for these fuel cells.

[0002]

[Description of the Prior Art]The gas separator for fuel cells is a component which constitutes the fuel cell stack by which two or more single cells were laminated, and has prevented mixing the fuel gas and oxidizing gas which are supplied to each of an adjacent single cell by having sufficient gas impermeability. Conventionally, such a gas separator for fuel cells has been manufactured using the carbon material or metallic material which has sufficient conductivity. Generally, it becomes possible [ since it excels in intensity, the metallic material can manufacture a thinner gas separator compared with the case where a carbon material is used, and ] to miniaturize the whole fuel cell by making a gas separator thin.

[0003]The gas separator for fuel cells usually has the rugged structure of predetermined form on that surface, and forms the channel of above-mentioned fuel gas and oxidizing gas between the components which adjoin within a fuel cell according to this rugged structure. The method of carrying out press forming of the metal plate is proposed as a method of manufacturing the gas separator which has such rugged structure with a metallic material (for example, JP,H7-161365,A etc.). According to such a manufacturing method, since the gas separator for fuel cells can be manufactured by the simple method of press forming, a manufacturing process can be simplified and shortened, productivity can be raised and the rise of a manufacturing cost can be suppressed.

[0004]

[Problem to be solved by the invention]However, in manufacturing the separator which has the rugged structure of predetermined form by carrying out press forming of the metal plate, forming fine rugged structure in sufficient accuracy produces the problem of being very difficult. Since "bending" or of a metal plate and "extending" are performed in the field in which rugged structure is formed when performing press forming, If a thin metal plate is used, the form of the rugged structure formed in both sides of a metal plate will receive restrictions mutually, and the flexibility at the time of designing rugged structure will be spoiled. Although the rugged structure on a gas separator forms the channel of fuel gas or oxidizing gas within a fuel cell, it can raise the capacity factor of gas by improving the form of such a gas passageway. thus, although the effect of raising fuel cell performance is expectable by raising the capacity factor of gas, there is a possibility that such

improvement may become difficult, by stopping the flexibility of a design of rugged structure. In order to secure the flexibility of the design at the time of performing press forming, the metal plate to be used is thickened and the method of the form of double-sided rugged structure making influence hard to be influenced is also considered, but it is hard to adopt thickening a gas separator in this way in order to cause enlargement of the whole fuel cell.

[0005]A manufacturing method of a gas separator for a gas separator for fuel cells of this invention, a fuel cell, and fuel cells, Such a problem was solved, it was made for the purpose of forming uneven shape for forming a gas passageway on metal sheet metal, holding flexibility of sufficient design about uneven shape without being accompanied by a process of pressing a metal plate, and the next composition was taken.

[0006]

[The means for solving a technical problem, and its operation and effect] A gas separator for fuel cells of this invention is laminated with a component containing an electrolyte layer and an electrode, constitutes a fuel cell, and within this fuel cell, A board part which consists of a plate-like member which is a gas separator for fuel cells which forms a channel of gas between adjoining components, and has conductivity with uneven shape formed in the surface, Let it be a summary to have an uneven shape formation part which forms said uneven shape on this board part by heights which carry out dishing-up adherence of the substance which has conductivity directly.

[0007]A gas separator for fuel cells of this invention constituted as mentioned above, It has an uneven shape formation part which forms said uneven shape, and a board part which consists of a plate-like member which has conductivity, and heights which carry out dishing-up adherence of the substance which has conductivity on this board part directly laminate with a component containing an electrolyte layer and an electrode, and a fuel cell is constituted by them. Within this fuel cell, a channel of gas is formed between a gas separator for fuel cells, and a component which adjoins this of uneven shape which said heights form.

[0008]A manufacturing method of a gas separator for fuel cells of this invention, It laminates with a component containing an electrolyte layer and an electrode, and a fuel cell is constituted, and within a fuel cell, between adjoining components, it is a manufacturing method of a gas separator for fuel cells which forms a channel of gas, and the following is comprised with uneven shape formed in the surface:

(a) A process of preparing a board part which consists of a plate-like member which has conductivity.

(b) A process of dishing up directly a conductive substance which carried out melting on said board part, adhering, and forming said uneven shape.

[0009]According to the manufacturing method of a gas separator for fuel cells of such this invention, and a gas separator for fuel cells. It is provided in the gas separator surface, and since it forms by dishing up a conductive substance which carried out melting of the uneven shape for forming a channel of gas within a fuel cell on a board part, flexibility of a design of the above-mentioned uneven shape provided in the gas separator surface is fully securable. That is, uneven shape formed in one field of a gas separator does not affect uneven shape formed in a field of another side like [ in a case of forming the above-mentioned uneven shape by press forming ]. Therefore, a design of the above-mentioned uneven shape can be improved freely, the diffusibility of gas which passes through a channel of gas inside a fuel cell is raised, and it becomes possible to improve performance of a fuel cell.

[0010]Since the above-mentioned uneven shape is formed by dishing up a conductive substance which carried out melting, compared with a case where the above-mentioned uneven shape is formed, a gas separator can be slimmed down by press forming. That is, since it is not necessary to prepare thickness for press forming for the above-mentioned board part, the above-mentioned board part can fully be slimmed down and the whole fuel cell can be miniaturized by this. Here, if a

metal plate is used as a board part, sufficient intensity is securable even if it slims down a board part.

[0011]In a gas separator for fuel cells of this invention, said heights are good also as having a predetermined void in the inside.

[0012]In a gas separator for fuel cells of this invention, said heights are good also as being formed on said board part at mesh state.

[0013]In a gas separator for fuel cells of this invention, said heights are good also as being porosity.

[0014]According to the gas separator for fuel cells constituted as mentioned above, since the weight saving of the whole separator can be carried out, the weight saving of the whole fuel cell can be carried out. Therefore, in using a fuel cell as a power supply for movement like a power supply for a drive of an electromobile, it becomes advantageous especially.

[0015]As described above, when making said heights into porosity, it can prevent being able to absorb the water of condensation produced in a gas passageway in a fuel cell by heights of this porosity, and the water of condensation stagnating all over a channel, and barring a flow of gas. The water of condensation absorbed by said heights of this porosity, Since it can evaporate in gas which passes through a channel of said gas according to temperature inside a fuel cell, When becoming possible to maintain humidity of gas which passes a gas passageway near the maximum vapor tension and using solid polyelectrolyte membrane as an electrolyte layer, desiccation of an electrolyte membrane can be prevented and performance of a fuel cell can be prevented from falling.

[0016]In a gas separator for fuel cells of this invention, said heights are good also as being formed in accordance with said predetermined direction at a line on said board part, in order to draw said gas which passes through said channel in the predetermined direction.

[0017]Thus, an arbitrary-shaped gas passageway can be formed on a gas separator by dishing up a conductive substance which carried out melting on a board part. That is, structure of specifying a course of a gas passageway which gas which passes a gas passageway by said heights is diffused by forming in a line said heights which consist of a conductive substance which carried out melting, and also is formed on a separator can be established in arbitrary form.

[0018]A fuel cell of this invention is a fuel cell which receives supply of gas and acquires electromotive force according to electrochemical reaction, does not have Claim 1 and makes it a summary to have a gas separator for fuel cells of a description 5 either.

[0019]According to such a fuel cell, by using a gas separator for fuel cells of this invention. Since flexibility of a design of form of a gas passageway formed between this gas separator and a component which adjoins this is fully secured, form of the above-mentioned gas passageway is improved and it becomes easy to aim at improvement in a rate of gas utilization in a fuel cell. A gas separator to be used dishes up a melting conductive substance on a board part, sake, compared with a case where a gas separator which carries out press forming of the metal plate is used, a fuel cell can be constituted using a thinner gas separator, and the whole fuel cell can be miniaturized by this.

[0020]

[Mode for carrying out the invention]In order to clarify further composition and an operation of this invention explained above, an embodiment of the invention is described based on an embodiment below. An explanatory view which expresses typically a situation of a section of the separator 30 which constitutes a fuel cell which is one embodiment with this invention preferred for drawing 1, and drawing 2 are top views which similarly express composition of the separator 30. Drawing 1 expresses some (near the periphery of the separator 30) situations of an A-A section of the separator 30 shown in drawing 2.

[0021]The separator 30 of the 1st embodiment of this invention is provided with the board part 22 which consists of metal plates, and the flow path forming part 24 which is formed in this board part 22 surface, and consists of a melting conductive substance, and the enveloping layer 26 which

consists of carbon is formed in that surface. In each near the periphery, i.e., the neighborhood, four pores which penetrate the board part 22 to the thickness direction are formed in the board part 22 which constitutes the separator 30. These four pores form the oxidizing gas holes 40 and 41 and the fuel gas holes 42 and 43 in the separator 30 (refer to drawing 2). In each of both sides of the board part 22, the level difference is provided in that surface and the crevice is formed of this level difference. That is, the crevice 45 is formed in one field (field shown in drawing 2), and the crevice 46 (refer to drawing 1) is formed in another field. The crevice 45 is concave structure which makes the oxidizing gas holes 40 and 41 open for free passage on one field of the separator 30, and the crevice 46 is concave structure which makes the fuel gas holes 42 and 43 open for free passage on the field of another side of the separator 30. On each crevice 45 and 46 with which the separator 30 is provided, the flow path forming part 24 is formed as a convex structure arranged regularly. In the field of both separators 30, including the flow path forming part 24, the enveloping layer 26 covers the whole surface of the board part 22, and is formed.

[0022]As a metal plate which constitutes the board part 22, a stainless plate was used by this example. Stainless steel was used also as a melting conductive substance which forms the flow path forming part 24. The separator 30 of this example heats predetermined metal like stainless steel with a heater even to temperature in which this carries out melting, dishes up this metal that carried out melting on the board part 22 which consists of metal plates, forms the flow path forming part 24, and it is characterized by things. Drawing 3 is a flow chart showing a manufacturing process of this separator 30. Below, a manufacturing method of the separator 30 is explained based on drawing 3.

[0023]A metal plate for forming the board part 22 first for manufacturing the separator 30 is prepared (Step S100). Next, this metal plate is processed and the board part 22 is formed (Step S110). Here, the above-mentioned metal plate was pierced, a pore equivalent to the oxidizing gas holes 40 and 41 and the fuel gas holes 42 and 43 was formed, and press working of sheet metal of the above-mentioned metal plate was carried out, and structure equivalent to the crevices 45 and 46 was formed.

[0024]Next, the flow path forming part 24 is formed on each field of this board part 22 (Step S120). Predetermined temperature in which the metal for forming the above-mentioned flow path forming part 24 carries out melting in order to form the flow path forming part 24 (although it changes with kinds of alloy) Metal dishing-up equipment provided with the heater which can be heated at about 1000 \*\* when using stainless steel, as described above, and the nozzle which carries out the regurgitation of the metal which carried out melting with the heater is used. Melting of the above-mentioned metal is heated and carried out with this heater, and from the above-mentioned nozzle, the molten metal of the specified quantity defined beforehand is made to breathe out, and molten metal is dished up on the board part 22. The outline of the composition of such metal dishing-up equipment 50 is shown in drawing 4. The slot 54 on the semi-cylindrical shape is established in the heater 52 with which this metal dishing-up equipment 50 is provided at the predetermined intervals, and the point of this slot 54 serves as the nozzle 56, respectively. When forming the flow path forming part 24, the metal of the specified quantity is supplied to each above-mentioned slot 54, and melting is carried out by the heat of the heater 52 within this metal fang furrow 54, and from each nozzle 56, it is breathed out by the position on the board part 22, and can dish up.

[0025]It is cooled on the board part 22, and the molten metal which was able to be dished up is pasted up on the board part 22, and the flow path forming part 24 is formed. the metal for here forming the flow path forming part 24 in the slot 54 established in the above-mentioned heater 52 – – \*\* -- by sending in a fixed quantity, the molten metal of the specified quantity is made to breathe out from the above-mentioned nozzle, it dishes up, and the flow path forming part 24 of the form defined beforehand is formed. The operation which dishes up molten metal using equipment provided with such a heater and a nozzle can use the technology of the well-known used for the automatic soldering process of an electronic circuit.

[0026]If such equipment for forming the flow path forming part 24 decides here to have a nozzle

corresponding to each of all the flow path forming parts 24 formed on one field of the separator 30, All the flow path forming parts 24 provided on one field of the separator 30 can be formed at once. Or as shown in drawing 2, when the flow path forming part 24 keeps a predetermined interval in front and rear, right and left and is arranged regularly. The equipment for forming the above-mentioned flow path forming part 24 is good also as having a nozzle equivalent to a part for the single tier of the flow path forming parts 24 formed on one field of the separator 30. In such a case, the flow path forming part 24 can be formed by shifting the relative position of these nozzles and board parts 22 one by one at the predetermined intervals, dishing up molten metal on the board part 22 by these nozzles.

[0027]If the flow path forming part 24 is formed in both sides of the board part 22 as described above next, the enveloping layer 26 which consists of carbon will be formed in the surface of the board part 22 which formed the flow path forming part 24 (Step S130), and the separator 30 will be completed. In this example, formation of the enveloping layer 26 was performed by spraying carbon powder on both sides of the board part 22 which formed the flow path forming part 24.

[0028]A fuel cell of this example is constituted using such a separator 30. A fuel cell of this example is a polymer electrolyte fuel cell, and has the stack structure which carried out the plural laminates of the single cell which is a constitutional unit. An exploded perspective view showing composition of the single cell 28 which a fuel cell of this example equips with drawing 5, and drawing 6 are the perspective views showing appearance of the stack structure 14 which laminated the single cell 28. Below, composition of a fuel cell of this example is explained based on drawing 5 and drawing 6.

[0029]The single cell 28 is constituted by the electrolyte membrane 31, the anode 32 and the cathode 33 (not shown) which pinch this electrolyte membrane 31 from both sides, and form sandwich structure, and the separator 30 which pinch this sandwich structure from both sides further and which was mentioned already (refer to drawing 5). Here, the electrolyte membrane 31 is an ion-exchange membrane of the proton conductivity formed with solid polymer material, for example, fluororesin, and shows good electrical conductivity according to a damp or wet condition. In this example, the Nafion film (made by Du Pont) was used. The alloy which consists of platinum as a catalyst or platinum, and other metal is applied to the surface of the electrolyte membrane 31. The anode 32 and the cathode 33 are gas diffusion electrodes, and are formed by the carbon crossing woven with the thread which consists [ both ] of carbon fiber. Or the composition which forms this anode 32 and cathode 33 by the carbon paper or carbon felt which consists of carbon fiber, or the composition formed using a foam metal is also preferred.

[0030]As shown in drawing 5, when laminating the electrolyte membrane 31, the anode 32, the cathode 33, and the separator 30 and forming the single cell 28, the flow path forming part 24 formed on the separator 30 and the crevices 45 and 46 form a gas passageway between adjoining gas diffusion electrodes. Namely, the crevice 46 and the flow path forming part 24 provided on the crevice 46 form the fuel gas flow route in a single cell between the surfaces of the adjoining anode 32 by the crevice 45 and the flow path forming part 24 provided on the crevice 45 forming the oxidizing gas passage in a single cell between the surfaces of the adjoining cathode 33.

[0031]When the single cell 28 is laminated and the stack structure 14 is assembled, The oxidizing gas holes 40 and 41 and the fuel gas holes 42 and 43 with which each separator 30 is provided form the oxidizing gas supply manifold, the oxidizing gas exhaust manifold, fuel gas supply manifold, and fuel gas exhaust manifold which penetrate stack structure 14 inside to the lamination direction, respectively. It explains later that the gas within these gas passageways formed in the stack structure 14 flows.

[0032]When assembling the stack structure 14 provided with each component explained above, it piles up one by one in order of the separator 30, the anode 32, the electrolyte membrane 31, the cathode 33, and the separator 30. The stack structure 14 which arranges the collecting electrode plates 36 and 37, the electric insulating plates 38 and 39, and the end plates 80 and 85 one by one to the both ends, and is shown in drawing 6 is completed.



[0033]the collecting electrode plates 36 and 37 -- gas, such as substantia-compacta carbon and a copper plate, -- it is formed of a conductive member [\*\*\*\* / un-], the electric insulating plates 38 and 39 are formed of insulation members, such as rubber and resin, and the end plates 80 and 85 are formed with metal, such as steel provided with rigidity. The output terminals 36A and 37A are formed in the collecting electrode plates 36 and 37, respectively, and an output of the electromotive force produced with the fuel cell constituted by the stack structure 14 is possible. To the collecting electrode plate 36, the electric insulating plate 38, and the end plate 80. four holes which lap with these pores and whose formation of a gas passageway is attained at the oxidizing gas holes 40 and 41 with which the separator 30 is provided, the fuel gas holes 42 and 43, and a corresponding position when the stack structure 14 is constituted -- structure is established, respectively. For example, corresponding to each of the oxidizing gas holes 40 and 41 and the fuel gas holes 42 and 43, the pores 81-84 are formed in the end plate 80 (refer to drawing 6).

[0034]when operating the fuel cell which consists of the stack structure 14, the pore 83 with which the end plate 80 is provided, and the fuel gas feed unit which is not illustrated are connected -- hydrogen -- rich fuel gas is supplied to the inside of a fuel cell. Similarly, when operating a fuel cell, the pore 81 and the oxidizing gas feed unit which is not illustrated are connected, and the oxidizing gas (air) containing oxygen is supplied to the inside of a fuel cell. Here, a fuel gas feed unit and an oxidizing gas feed unit are equipment which performs humidification and application of pressure of the specified quantity to each gas, and is supplied to a fuel cell. When operating a fuel cell, the pore 84 and the fuel gas exhaust which is not illustrated are connected, and the pore 82 and the oxidizing gas exhaust which is not illustrated are connected, and fuel gas and oxidizing gas are discharged out of a fuel cell by these pieces of equipment.

[0035]Although the built-up sequence of each component when the stack structure 14 is constituted is as having mentioned already, in the field which touches the separator 30, a predetermined seal member is provided in the periphery of the electrolyte membrane 31 (not shown). This seal member prevents fuel gas and oxidizing gas beginning to leak from each inside of a single cell, and it plays the role which prevents fuel gas and oxidizing gas from being mixed in the stack structure 14.

[0036]The stack structure 14 which consists of each component explained above is held where predetermined thrust is applied to the lamination direction, and a fuel cell completes it. About the composition which presses the stack structure 14, since it was not concerned, the graphic display was abbreviated to the important section of this invention. In order to hold pressing the stack structure 14, It is good also as composition which binds the stack structure 14 tight using a bolt and a nut, or the stack member housing of predetermined form is prepared, It is good also as composition which bends the both ends of stack member housing after storing the stack structure 14 inside this stack member housing, and makes thrust act on the stack structure 14.

[0037]Although drawing 2 did not indicate, the oxidizing gas holes 40 and 41 for the separator 30 of this example to form the gas manifold which oxidizing gas passes -- and, It also has the pore for forming the cooling water manifold which cooling water other than the fuel gas holes 42 and 43 for forming the gas manifold which fuel gas passes passes. Although the chemical energy in the fuel supplied to a fuel cell is changed into electrical energy in the electrochemical reaction which advances with a fuel cell, conversion to electrical energy from chemical energy is not necessarily performed thoroughly, and the remaining energies that were not changed into electrical energy are released as heat. Thus, in order to continue generation of heat with power generation and to carry out the operating temperature of a fuel cell desirable within the limits, the fuel cell usually provided the channel of cooling water in the fuel cell, and has removed excessive heat by passing cooling water in a fuel cell. When manufacturing the separator 30, the pore for forming the cooling water manifold formed by penetrating the inside of a fuel cell to the lamination direction pierces a metal plate, and is formed simultaneously with the oxidizing gas holes 40 and 41 and the fuel gas holes 42 and 43 (drawing 3 step S110 reference).



[0038]Next, the situation of the flow of the fuel gas in the fuel cell provided with the above composition and oxidizing gas is explained. The fuel gas supplied from the fuel gas feed unit mentioned already is distributed to each single cell 28 via the fuel gas supply manifold which the fuel gas hole 42 with which the separator 30 is provided forms. The electrochemical reaction which advances on the catalyst applied to the electrolyte membrane 31 is presented with it via the anode 32 which is a gas diffusion electrode, the fuel gas distributed to each single cell 28 passing the fuel gas flow route in a single cell formed with the crevice 46 and the flow path forming part 24, and the anode 32. At this time, the fuel gas which passes the fuel gas flow route in a single cell is effectively diffused by colliding with the side of the flow path forming part 24, and the fuel gas (hydrogen) of quantity reaches even the above-mentioned catalyst enough by this. The fuel gas which passed the fuel gas flow route in a single cell gathers to the fuel gas exhaust manifold which the fuel gas hole 43 forms, and is discharged by the fuel gas exhaust.

[0039]The oxidizing gas supplied from the oxidizing gas feed unit is distributed to each single cell 28 via the oxidizing gas supply manifold which the oxidizing gas hole 40 with which the separator 30 is provided forms. The electrochemical reaction which advances on the catalyst applied to the electrolyte membrane 31 is presented with it via the cathode 33 which is a gas diffusion electrode, the oxidizing gas distributed to each single cell 28 passing through the oxidizing gas passage in a single cell formed by the crevice 45 and the flow path forming part 24, and the cathode 33. Here, the oxidizing gas which passes through the oxidizing gas passage in a single cell is effectively diffused by colliding with the side of the flow path forming part 24. The oxidizing gas which passed through the oxidizing gas passage in a single cell gathers to the oxidizing gas exhaust manifold which the oxidizing gas hole 41 forms, and is discharged by the oxidizing gas exhaust.

[0040]According to the manufacturing method of the separator 30 of this example, and the separator 30 constituted as mentioned above. The flow path forming part 24 which is the convex structure for being provided on the separator 30 and forming a gas passageway in a single cell, Since it forms by dishing up molten metal on the board part 22, form of a flow path forming part formed in each of both sides of the separator 30 cannot receive restrictions mutually, and flexibility about a design of a flow path forming part can fully be secured. When flexibility in connection with a design of a flow path forming part increases, it becomes possible to improve effectively form of a flow path forming part, and arrangement, to raise the diffusibility of gas from a gas passageway in a single cell to the direction of an electrolyte membrane, and to raise a capacity factor of gas in a fuel cell provided with the separator 30 of this example.

[0041]In order to form the flow path forming part 24 by dishing up molten metal using metal dishing-up equipment provided with a heater and a nozzle according to the manufacturing method of the separator 30 of this example, it is based on a manufacturing method of a separator known conventionally, for example, a method of carrying out press forming of a metal plate or the carbon material, and machining -- carrying out shaving appearance -- etc. -- compared with a method, the fine flow path forming part 24 can be easily formed in sufficient accuracy. That is, metal which heated and carried out melting with a heater can be dished up, and a separator can be manufactured by a simple manufacturing process of making the flow path forming part 24 adhere on the board part 22. Like [ in a case of carrying out press forming of the metal plate ], metal bending and since it is not necessary to carry out \*\*\*\*\* consideration, in order to form the board part 22, a metal plate thin enough can be used, and the whole fuel cell can be miniaturized.

[0042]The metal plate which constitutes the board part 22 from an above-mentioned embodiment, and the molten metal used in order to form the flow path forming part 24 used both stainless steel, and it is good also as forming the board part 22 and the flow path forming part 24 using a different material. If the metal plate which constitutes the board part 22 has sufficient conductivity and intensity, and predetermined corrosion resistance, it is good also as forming with other materials, and it is good also as using other materials as molten metal which forms the flow path forming part 24, if it has sufficient conductive and predetermined corrosion resistance. What is necessary is just

metal which can heat and carry out melting using the heater with which the metal dishing-up equipment mentioned already is provided here as metal which forms the flow path forming part 24. When the metal plate which constitutes the board part 22 dishes up the above-mentioned metal which carried out melting, it should just be formed with the material which bears the temperature of this metal that carried out melting. In particular, like this example, if the board part 22 and the flow path forming part 24 are formed with the same material, the contact resistance between both can be reduced and the internal resistance of the fuel cell constituted using such a separator 30 can be stopped.

[0043] Since the separator 30 of the above-mentioned embodiment forms in the surface the enveloping layer 26 which consists of carbon, it can realize dramatically outstanding corrosion resistance. Conductivity and corrosion resistance are dramatically excellent in carbon, and it is excellent as a material which covers the separator 30. In particular, in the fuel cell of the above-mentioned embodiment, the gas diffusion electrode (the anode 32 and the cathode 33) which adjoins the separator 30 and is allocated, and the effect that the contact resistance between both becomes small since it is formed with carbon are acquired. When both the contact portions of the separator 30 and a gas diffusion electrode consist of carbon, there is no possibility of forming a cell selectively like [ in the case of contacting carbon and metal ], and there is also no possibility that the corrosion resistance on the surface of a separator may fall while using a fuel cell.

[0044] It is good also as forming the above-mentioned enveloping layer 26 here with metal excellent in corrosion resistance, such as other materials, for example, titanium, nickel, etc., if the corrosion resistance of the separator 30 and the internal resistance of a fuel cell fully serve as tolerance level. Or if it supposes that the board part 22 and the flow path forming part 24 are formed with the material which was fully excellent in corrosion resistance as described above, the enveloping layer 26 is good also as not providing. If the alloy containing the stainless steel, titanium, and nickel which were mentioned already is used as metal which forms the flow path forming part 24, a certain amount of corrosion resistance is realizable, and. Depending on the metal used for alloying, melting of the metal is carried out at a temperature lower than the above-mentioned stainless steel, titanium, and nickel, and it becomes possible to operate dishing up.

[0045] The board part 22 is good also as forming by components other than metal, and just pastes up molten metal on the surface by sufficient intensity by dishing up molten metal. Or in order to secure adhesive property sufficient between molten metal, it is good also as performing a further predetermined surface treatment to the surface of the board part 22, before dishing up molten metal. The flow path forming part 24 will also be good also as forming with melting conductive substances other than metal, if it has sufficient conductivity, and it can paste up by intensity sufficient on the board part 22 and sufficient corrosion resistance can be secured. Conductive resin can be used, for example and what is necessary is just to choose what suits the conditions above-mentioned out of this as materials other than the metal which forms the board part 22 or the flow path forming part 24.

[0046] In the 1st embodiment of the above, when forming the board part 22 which processes a metal plate and has the structure of the crevices 45 and 46 etc., we decided to perform press forming, but it is good also as forming the uneven shape of the board part 22 by other methods. For example, it is good also as forming the board part 22 with casting, a forge, etc.

[0047] In the board part 22, it is good also as forming the convex structure formed by dishing up of molten metal instead of forming a crevice like the crevices 45 and 46, in order to form the channel which makes the fuel gas hole or oxidizing gas hole which counters open for free passage. An example of such composition is shown in drawing 7 as the separator 130. The separators 130 shown in drawing 7 are the separator 30 mentioned already and a separator used for the same fuel cell, attach the component number same about the composition which is common in the separator 30, and omit detailed explanation.

[0048] The separator 130 by dishing up molten metal like the flow path forming part 24, The flow

path forming part 128 which is convex structure is formed, gas is led to a position used as a boundary in which the crevices 45 and 46 are formed in the separator 30, and a corresponding position between a fuel gas hole which counters by this convex structure, or an oxidizing gas hole, and a gas passageway in a single cell is formed in them. Although only one field side of the separator 130 is shown and the flow path forming part 128 which forms a gas passageway which makes the oxidizing gas holes 40 and 41 open for free passage is expressed with drawing 7, The flow path forming part 128 which is the same convex structure that forms also in a rear face of the separator 130 a gas passageway which makes the fuel gas holes 42 and 43 open for free passage is formed. [0049]Such a flow path forming part 128 can be formed by dishing up molten metal on the board part 122 on monotonous like the flow path forming part 24 mentioned already using metal dishing-up equipment provided with a heater and a nozzle. Since a process of carrying out press forming of the metal plate by having such composition can be abolished, a manufacturing process can be simplified. Since it becomes unnecessary [ press forming for forming a crevice ], the separator 30 can be formed using a thinner metal plate, and it becomes possible to miniaturize the whole fuel cell further.

[0050]The flow path forming part 24 for diffusing the gas which passes the above-mentioned gas passageway in a single cell by the convex structure which dished up molten metal, It is good also as forming the convex structure for forming the flow path forming part 128 which specifies the field which forms the gas passageway in a single cell, and also specifying the form of the gas passageway in a single cell. In this case, the arbitrary-shaped gas passageway in a single cell can be formed by dishing up molten metal to the line which runs in all directions. An example of such a separator is shown in drawing 8 as the separator 230. In the separator 230, the same component number is given to the portion which is common in the separator 30 and the separator 130, and detailed explanation is omitted.

[0051]Drawing 8 is a top view showing the composition of the separator 230. The separator 230 is provided with the flow path forming part 228 which it had the flow path forming part 24 for stirring the gas which passes the gas passageway in a single cell as well as the separator mentioned already, and also dished up and formed molten metal like this. In the fuel cell which the flow path forming part 228 formed the channel bent on the separator 230, and was formed using the separator 230. The oxidizing gas distributed to each single cell passes through the channel of the bent form which this flow path forming part 228 forms, and is led to the oxidizing gas exhaust manifold which the oxidizing gas hole 241 forms from the oxidizing gas supply manifold which the oxidizing gas hole 240 forms. Although drawing 8 showed only one field of the separator 230, the same flow path forming part 228 also as the field of another side is formed. The flow path forming part 228 of the field of another side makes the fuel gas holes 242 and 243 open for free passage, and forms the fuel gas flow route in a single cell drawn in the course which bent fuel gas within the single cell. Thus, the form of the gas passageway in a single cell can be arbitrarily provided besides forming the convex structure for stirring gas by dishing up molten metal on the board part 222.

[0052]Although the description was omitted with the separator 230 shown in the separator 130 shown in drawing 7, and drawing 8, What is necessary is just to suppose that the convex structure which dished up molten metal is established further also around an oxidizing gas hole and a fuel gas hole, when the convex structure which dished up molten metal prescribes the form of the gas passageway in a single cell like these separators. Thus, if the convex structure which dished up molten metal is formed also around an oxidizing gas hole and a fuel gas hole, It becomes possible to establish the structure for fully securing the gas-seal nature between a separator and the component which adjoins this by this convex structure, without carrying out press forming of the board part, and forming unevenness.

[0053]As described above, when dishing up molten metal and providing the flow path forming part of various form on a board part, it is desirable to define the form of the heater with which the form of a nozzle and the nozzle which are used for dishing up are provided according to the kind of molten

metal to be used. The viscosity of the molten metal in the case of dishing up can be adjusted by adjusting the temperature of the heater at the time of carrying out melting of the metal. Drawing 9 is a cross section showing the form of the metal which was able to be dished up. Namely, the metal which was able to be dished up when molten metal was dished up on the board part, Although the form where the direction of the parietal region sharpens thinly compared with the bottom side is presented (refer to drawing 9 (A)), it can stop becoming the form where the parietal region of the metal which was able to be dished up sharpened thinly compared with the bottom side by lowering the temperature of a heater and increasing the viscosity of molten metal (refer to drawing 9 (B)). The viscosity of molten metal is improved, and if the form of the dished-up metal is changed in this way, the contact resistance between the flow path forming part formed with molten metal and the component which adjoins at the increase of a touch area, a separator, and this with the component (gas diffusion electrode) which adjoins a separator can be reduced.

[0054]After dishing up molten metal on a board part, it is good also as shaving off the parietal region of the dished-up molten metal mechanically, and forming the parietal region of a flow path forming part level mechanically. By doing in this way, flattening of the parietal region of a flow path forming part can fully be carried out, and the touch area between the adjoining components can fully be secured. The height of each flow path forming part can be arranged by adding the process of deleting the parietal region. Although it is possible to form the flow path forming part of uniform height in accuracy sufficient by adjusting the viscosity of the molten metal in the case of dishing up, and dishing up the molten metal of the specified quantity, as described above, it is good also as adding machining further and raising the homogeneous accuracy of the height of a flow path forming part.

[0055]When dishing up molten metal and forming a flow path forming part on a board part, the composition which dishes up molten metal so that it may become mesh state is also preferred. It is shown below by making such composition into the 2nd embodiment. Drawing 10 is an explanatory view showing the situation of the flow path forming part 324 formed in the surface of the separator 330 of the 2nd embodiment. Although only the field where the flow path forming part 324 was formed on the board part 322 is expressed with drawing 10, This separator 330 is provided with the oxidizing gas holes 40 and 41 and the fuel gas holes 42 and 43 like the separator 30 of the 1st embodiment, and the flow path forming part 324 shown in drawing 10 is formed on the flow path forming part 24 and the crevice 45 and 46 which makes these holes open for free passage similarly.

[0056]In the separator 330, as shown in drawing 10, the flow path forming part 424 is formed by dishing up so that molten metal may serve as mesh state. It is formed on the board part 322 by making molten metal breathe out, moving it, after adjusting the temperature of the heater of metal dishing-up equipment, as such a flow path forming part 324 shows [ molten metal ] sufficient viscosity making a waveform go up and down the nozzle with which metal dishing-up equipment is provided. Although the description is omitted in drawing 10, if an enveloping layer is provided in the surface like the flow path forming part of the embodiment mentioned already, in the flow path forming part 424, the corrosion resistance of the flow path forming part 424 can be raised.

[0057]According to the separator 330 of the 2nd embodiment constituted as mentioned above, in addition to the same effect as the separator 30 mentioned already, the still more nearly following effects are done so. That is, the flow path forming part 324 is formed in mesh state, and since the predetermined void is established in the inside of the flow path forming part 424, the weight saving of the separator 330 whole can be carried out more. Therefore, the weight saving of the whole fuel cell can be carried out more by using such a separator 330. It becomes advantageous especially that the weight saving of the fuel cell can be carried out, when using a fuel cell as a power supply for movement which has restriction in weight like [ in the case of mounting as a power supply for a drive of an electromobile ]. The form of the flow path forming part 324 formed in mesh state is not restricted to the form shown in drawing 10. What is necessary is just the form which can be formed by making molten metal breathe out and dishing up from the nozzle with which the metal dishing-up

equipment mentioned already is provided, and the above-mentioned effect can be acquired by establishing a predetermined void in an inside.

[0058] Although we decided to form the flow path forming part 324 in mesh state by adjusting operation of the nozzle at the time of dishing up molten metal, and the viscosity of molten metal in the 2nd embodiment of the above, After dishing up a predetermined filler on a board part first and dishing up molten metal on this filler in advance of dishing up of molten metal, it is good for an inside by removing a filler also as forming the flow path forming part which has a predetermined void.

Drawing 11 is an explanatory view showing the manufacturing process of such a separator 430.

[0059] In order to manufacture the separator 430, the board part 22 in the separator 30 of the 1st embodiment and the same board part 422 are prepared first, and the filling portion 421 is formed on this board part 422 (refer to drawing 11 (A)). This filling portion 421 dishes up resin on the board part 422 by operation of dishing up of the molten metal in the embodiment mentioned already, and same operation. After the resin used here has the heat resistance to the temperature of the molten metal in the case of the operation of dishing up of the flow path forming part 424 mentioned later and forms the flow path forming part 424 further, operation of removing this filling portion 421 is possible for it.

[0060] If the filling portion 421 is formed on the board part 422 next, the flow path forming part 424 will be formed on each filling portion 421 by dishing up molten metal like the embodiment mentioned already (refer to drawing 11 (B)). If the flow path forming part 424 is formed, processing which removes the filling portion 421 will be performed and the separator 430 will be completed (refer to drawing 11 (C)). What is necessary is here, just to suppose that removal of the filling portion 421 is carried out by the chemical treatment of dissolving the resin which constitutes the filling portion 421 using the solvent according to the kind of resin which constitutes the filling portion 421.

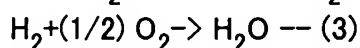
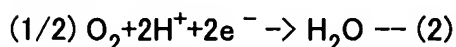
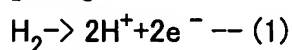
[0061] In the above-mentioned separator 430, although it decided to remove after formation of the flow path forming part 424, if the filling portion 421 forms this filling portion with a conductive material, it will be good also as not performing removal of a filling portion. For example, the filling portion 421 is formed with conductive resin, and if the conductivity of this conductive resin is enough as a component of a separator, it is good also as completing the separator 430, with the filling portion 421 formed. Also in this case, since it is formed with resin whose inside of the flow path forming part 424 is lighter-weight than the metal which constitutes the flow path forming part 424, the weight saving of the separator 430 whole can be carried out more. Thus, in the separator 430, as well as the separator 330 of the 2nd embodiment when removing the filling portion 421 and not removing, the predetermined effect by carrying out the weight saving of the separator can be acquired. If the enveloping layer 26 in the separator 30 of the 1st embodiment and the same enveloping layer are provided in the surface of the flow path forming part 424, the corrosion resistance of a separator can be raised further.

[0062] It is good also as forming a flow path forming part with porous metal by considering a separator as composition which carries out a weight saving. It explains below by making such composition into the 3rd embodiment. Composition of the separator 530 of the 3rd embodiment is expressed to drawing 12. Although the separator 530 forms the flow path forming part 524 by dishing up molten metal on the board part 22 and the same board part 522 like the separator 30 of the 1st embodiment, unlike the 1st embodiment, it forms the flow path forming part 524 with porous metal here. In order to make the flow path forming part 524 into porosity, in this example, the 2nd ingredient is beforehand mixed to metal for forming the flow path forming part 524. If this metal carries out temperature up of the 2nd ingredient mixed to metal to the 1st temperature that carries out melting with metal which forms the flow path forming part 524, It can be made to be able to evaporate in the state where it distributed in the above-mentioned metal, by mixing being enough uniformly [ as the above-mentioned metal ] possible, and raising the 2nd temperature still higher than the 1st temperature (or it is made to decompose and evaporate). Therefore, where the 2nd ingredient of the above and the above-mentioned molten metal are mixed, By carrying out

temperature up to temperature to which this 2nd ingredient evaporates, and dishing up molten metal on a board part, where many air bubbles are formed in an inside, molten metal can be dished up, and the porosity flow path forming part 524 can be formed by this.

[0063]In order to form a flow path forming part by dishing up molten metal like the embodiment mentioned already according to the separator 530 formed as mentioned above, the flexibility of a design of the form of a flow path forming part is secured, and the still more nearly following effects are done so besides the effect that a separator can be slimmed down, and the effect that the weight saving of the separator can be carried out like the 2nd embodiment when a flow path forming part is porosity. That is, when the flow path forming part 524 is porosity, it becomes possible to absorb the produced water produced in the gas passageway in a single cell by the flow path forming part of this porosity, or to adjust the humidity of the gas which evaporates the absorbed produced water in gas and passes the gas passageway in a single cell. Here, the humidity control in the produced water and gas which are produced within a fuel cell is explained. Although a fuel cell receives supply of the fuel gas containing hydrogen in the anode side and acquires electromotive force according to electrochemical reaction in response to supply of the oxidizing gas which contains oxygen in the cathode side, it shows this electrochemical reaction below.

[0064]



[0065](1) A formula expresses the reaction in an anode, and a reaction [ in / in (2) types / a cathode ], and the reaction shown in (3) types advances in the whole fuel cell. Thus, when electrochemical reaction advances, water arises in the cathode side. Although the water produced in the cathode side evaporates in the oxidizing gas which passes through the oxidizing gas passage in a single cell, when the temperature of the oxidizing gas which passes through the inside of a fuel cell falls selectively, the maximum vapor tension of oxidizing gas may fall and produced water may condense it. When the produced water condensed in this way stagnates in the oxidizing gas passage in a single cell, the channel of gas is taken up and there is a possibility of preventing electrochemical reaction from advancing smoothly. Like this example, if the flow path forming part 524 is made into porosity, even if produced water condenses in the oxidizing gas passage in a single cell, the produced water which could absorb this by the porous flow path forming part 524, and condensed it can be prevented from closing a gas passageway.

[0066]Such an effect can be acquired also not only in the oxidizing gas passage in a single cell but in the fuel gas flow route in a single cell. As described above, it is only the cathode side that produced water arises according to electrochemical reaction, but the fuel gas supplied to the anode side is the purpose of preventing desiccation of an electrolyte membrane, and is usually humidifying. Thus, after humidifying, by supplying fuel gas, there is a possibility that the water of condensation may arise, also in the fuel gas flow route in a single cell, but. By making the flow path forming part 524 into porosity, the produced water of condensation can be absorbed and the flow of fuel gas can be prevented from being barred with the water of condensation.

[0067]The porous flow path forming part 524 can realize the function to adjust so that the humidity of the gas which passes the gas passageway in a single cell may become enough, by evaporating the absorbed water of condensation in gas. In a fuel cell, when there are many gas mass flows supplied to each electrode, As for the gas which passes the gas passageway in a single cell, in order to prevent moisture's being away held in the cathode side which produced water produces by gas from an electrolyte membrane from the first, an electrolyte membrane's getting dry, and battery capacity falling [ the anode side ], it is desirable to have sufficient humidity. In this example, the excessive water of condensation produced in the gas passageway is absorbed by the flow path forming part 524, and this absorbed water of condensation evaporates to the maximum vapor tension according

to the temperature in a fuel cell in the gas which passes the gas passageway in a single cell. Therefore, by making this flow path forming part 524 absorb the produced water of condensation by making the flow path forming part 524 into porosity, the humidity of the fuel gas and oxidizing gas which pass the gas passageway in a single cell can always be maintained at the state near maximum vapor tension, and it can prevent an electrolyte membrane drying. Thus, in making the flow path forming part 524 into porosity. It becomes possible to adjust absorption of the water of condensation in the gas passageway in a single cell, and the humidity of gas good by adjusting the 2nd kind, quantity, etc. of an ingredient that are mixed to molten metal and that were mentioned already, when forming the flow path forming part 524, and adjusting suitably the size and quantity of the air bubbles formed in molten metal.

[0068]Although a flow path forming part decided to form in both sides of a separator in an embodiment mentioned already, it is good also as providing a flow path forming part only in field of one of these in a separator allocated in a stack structure end. It is good also as supposing that a flow path forming part which forms a gas passageway in a single cell which above-mentioned fuel gas or oxidizing gas passes is provided, and forming rugged structure for forming a channel of cooling water mentioned already on a field of another side on field of one of these, in a separator. Also in this case, a predetermined effect by dishing up molten metal and providing a flow path forming part can be acquired.

[0069]Since a polymer electrolyte fuel cell was constituted, a separator of the above-mentioned embodiment was used, but it is good also as using, since a fuel cell of a different kind is constituted. If a separator is constituted from under an operating condition of a fuel cell by stable material, the same effect as an embodiment mentioned already can be acquired.

[0070]As for this invention, although an embodiment of this invention was described above, it is needless to say that it can carry out with aspect which becomes various within limits which are not limited to such an embodiment at all and do not deviate from a summary of this invention.

---

[Translation done.]



\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

## DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

### [Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1]It is an explanatory view which expresses typically the situation of the section of the separator 30 which is one suitable embodiment of this invention.

[Drawing 2]It is a top view showing the composition of the separator 30.

[Drawing 3]It is a flow chart showing the manufacturing process of the separator 30.

[Drawing 4]It is an explanatory view showing the composition of metal dishing-up equipment.

[Drawing 5]It is an exploded perspective view showing the composition of the single cell 28.

[Drawing 6]It is a perspective view showing the appearance of the stack structure 14 which laminated the single cell 28.

[Drawing 7]It is a top view showing the composition of the separator 130.

[Drawing 8]It is a top view showing the composition of the separator 230.

[Drawing 9]It is a cross section showing the appearance of the metal which was able to be dished up on the board part.

[Drawing 10]It is an explanatory view showing the situation of the flow path forming part 324 formed in the surface of the separator 330.

[Drawing 11]It is an explanatory view showing the manufacturing process of the separator 430.

[Drawing 12]It is an explanatory view showing the composition of the separator 530.

### [Explanations of letters or numerals]

14 -- Stack structure

22, 122, 222,322,422,522 -- Board part

24,324,424,524 -- Flow path forming part

26 -- Enveloping layer

28 -- Single cell

30, 130, 230,330,430,530 -- Separator

31 -- Electrolyte membrane

32 -- Anode

33 -- Cathode

36, 37 -- Collecting electrode plate

36A, 37A -- Output terminal

38, 39 -- Electric insulating plate

40, 41 -- Oxidizing gas hole

42, 43 -- Fuel gas hole

45, 46 -- Crevice

50 -- Metal dishing-up equipment

52 -- Heater

54 -- Slot

56 -- Nozzle

80, 85 -- End plate  
81-84 -- Pore  
128,228 -- Flow path forming part  
240,241 -- Oxidizing gas hole  
242,243 -- Fuel gas hole  
421 -- Filling portion

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

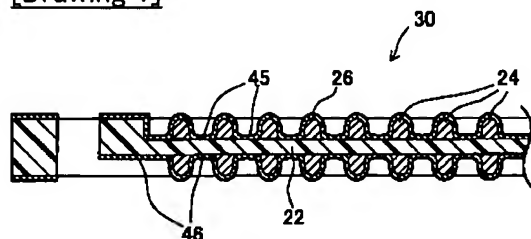
3.In the drawings, any words are not translated.

---

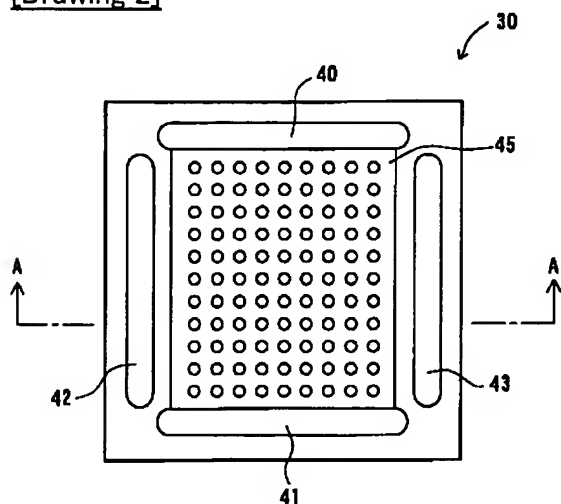
DRAWINGS

---

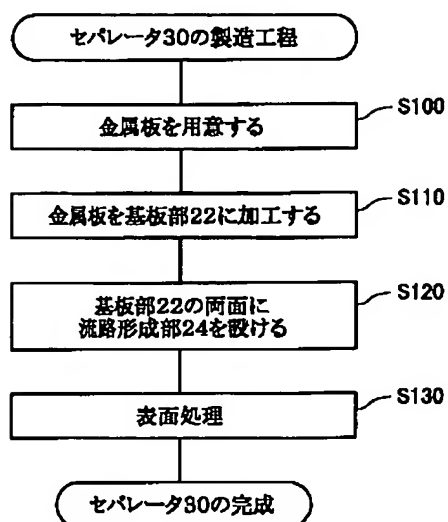
[Drawing 1]



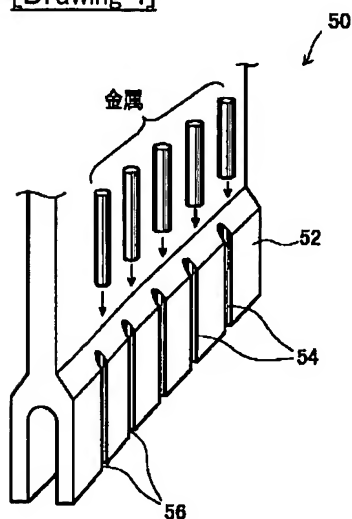
[Drawing 2]



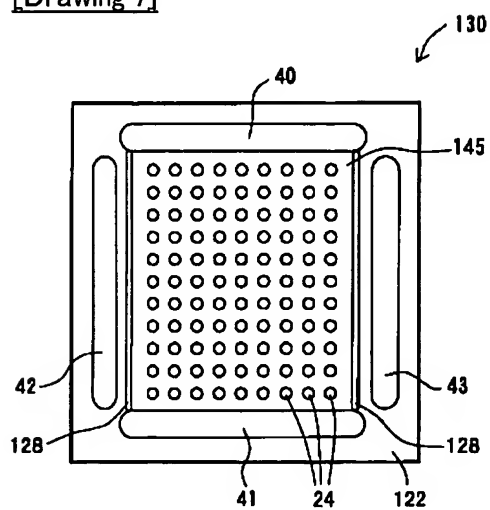
[Drawing 3]



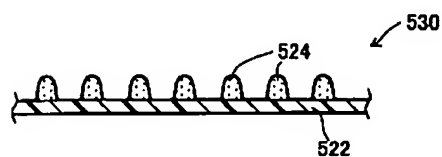
[Drawing 4]



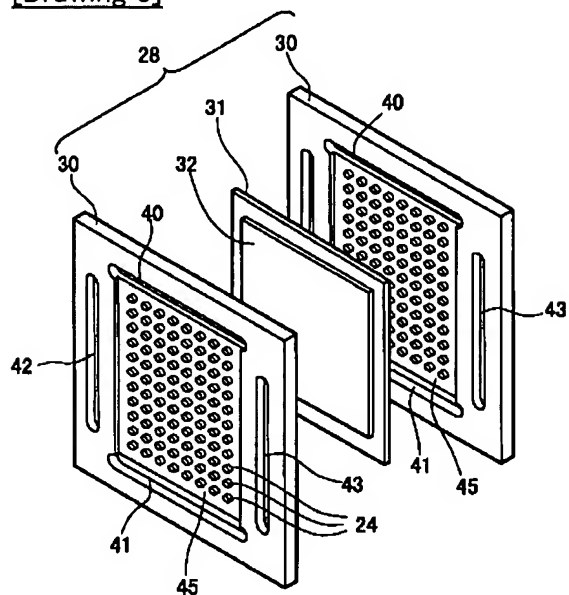
[Drawing 7]



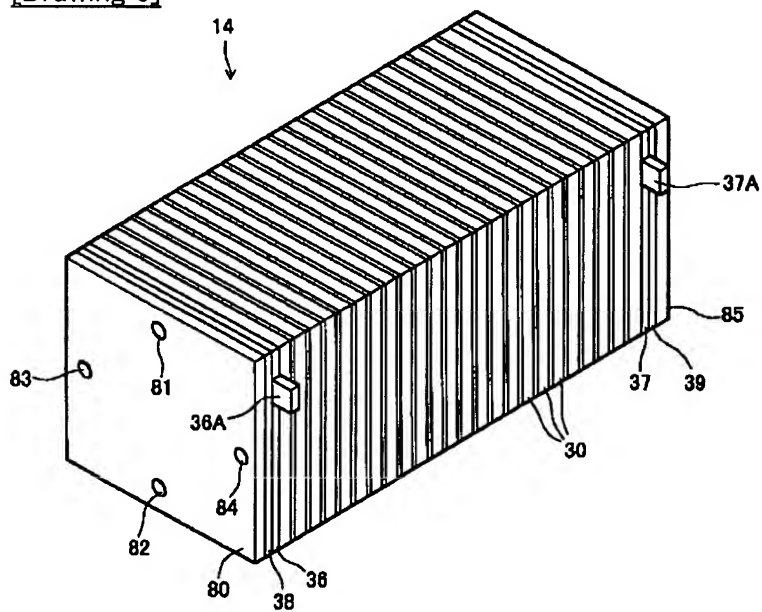
[Drawing 12]



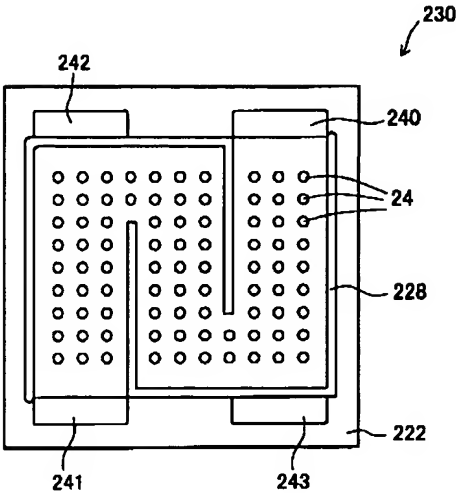
[Drawing 5]



[Drawing 6]



[Drawing 8]



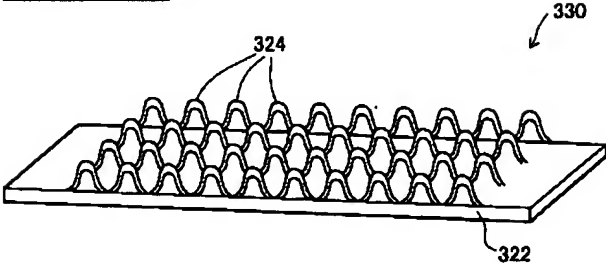
[Drawing 9]  
(A)



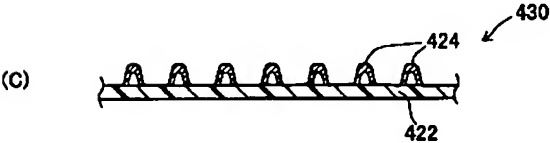
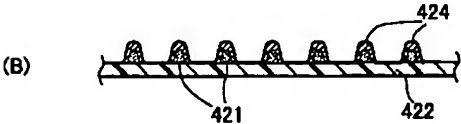
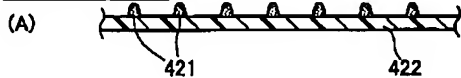
(B)



[Drawing 10]



[Drawing 11]



---

[Translation done.]



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-215902

(P2000-215902A)

(43)公開日 平成12年8月4日(2000.8.4)

(51)Int.Cl.  
H 0 1 M 8/02

識別記号

F I  
H 0 1 M 8/02

テーマコード(参考)

B 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 12 頁)

(21)出願番号 特願平11-17901

(22)出願日 平成11年1月27日(1999.1.27)

(71)出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72)発明者 木下 克彦

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74)代理人 100096817

弁理士 五十嵐 孝雄 (外2名)

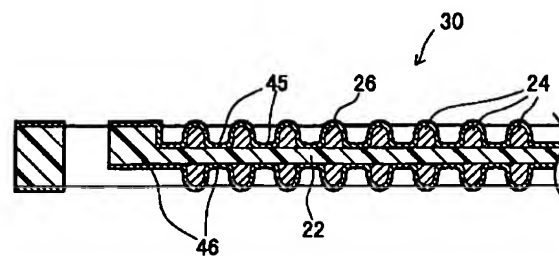
Fターム(参考) 5H026 AA06 BB00 CC04

(54)【発明の名称】 燃料電池用ガスセパレータおよび燃料電池、並びに燃料電池用ガスセパレータの製造方法

(57)【要約】

【課題】 金属板をプレスする工程を伴うことなく、凹凸形状に関する充分な設計の自由度を保持しながら、ガス流路を形成するための凹凸形状を薄板上に形成する。

【解決手段】 セパレータ30は、基板部22上に流路形成部24を形成してなる部材であり、ガス拡散電極や電解質膜と共に積層して燃料電池を構成する。基板部22は、金属板をプレス成形してなり、その表面に凹部45、46を形成している。流路形成部24は、基板部22の凹部45、46上に、加熱して溶融させた金属を所定量ずつ盛りつけて固着させることによって形成する。セパレータ30を用いて構成した燃料電池では、各単セルに分配されたガスは、凹部45、46とガス拡散電極との間で形成される流路を通過しつつ、流路形成部24によって攪拌される。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 電解質層および電極を含む部材と共に積層されて燃料電池を構成し、該燃料電池内では、表面に形成された凹凸形状によって、隣接する部材との間でガスの流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって、導電性を有する板状部材からなる基板部と、該基板部上に、導電性を有する物質を直接盛りつけ固着してなる凸部によって、前記凹凸形状を形成する凹凸形状形成部とを備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項2】 前記凸部は、その内部に所定の空隙を有する請求項1記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項3】 前記凸部は、前記基板部上においてメッシュ状に形成されている請求項1記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項4】 前記凸部は多孔質である請求項1記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項5】 請求項1記載の燃料電池用ガスセパレータであって、前記凸部は、前記流路を通過する前記ガスを所定の方向に導くために、前記基板部上において前記所定の方向に沿って線状に形成されている燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項6】 ガスの供給を受け、電気化学反応によって起電力を得る燃料電池であって、請求項1ないし5いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータを備える燃料電池。

【請求項7】 電解質層および電極を含む部材と共に積層されて燃料電池を構成し、燃料電池内では、表面に形成された凹凸形状によって、隣接する部材との間でガスの流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 導電性を有する板状部材からなる基板部を用意する工程と、

(b) 溶融した導電性物質を、前記基板部上に直接盛りつけて固着し、前記凹凸形状を形成する工程とを備える燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用ガスセパレータおよび燃料電池、並びに燃料電池用ガスセパレータの製造方法に関し、詳しくは、単セルを複数積層して構成する燃料電池において、隣接する単セル間に設けられ、隣接する部材との間で燃料ガス流路および酸化ガス流路を形成すると共に、燃料ガスと酸化ガスとを隔てる燃料電池用ガスセパレータ、および該ガスセパレータを用いた燃料電池、並びに該燃料電池用ガスセパレータの製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】燃料電池用ガスセパレータは、複数の単セルが積層された燃料電池スタックを構成する部材であって、十分なガス不透過性を備えることによって、隣り合う単セルのそれぞれに供給される燃料ガスおよび酸化ガスが混じり合うのを防いでいる。従来、このような燃料電池用ガスセパレータは、十分な導電性を有する炭素材料あるいは金属材料を用いて製造されてきた。一般に、金属材料は強度に優れているため、炭素材料を用いる場合に比べてより薄いガスセパレータを製造することが可能であり、ガスセパレータを薄くすることによって、燃料電池全体を小型化することが可能となる。

【0003】また、燃料電池用ガスセパレータは、通常はその表面に所定の形状の凹凸構造を有し、この凹凸構造によって、燃料電池内で隣接する部材との間で、上記した燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成する。このような凹凸構造を有するガスセパレータを、金属材料によって製造する方法として、金属板をプレス成形する方法が提案されている（例えば、特開平7-161365号公報等）。このような製造方法によれば、プレス成形という簡便な方法によって燃料電池用ガスセパレータを製造することができるため、製造工程を簡素化・短期化して生産性を向上させ、製造コストの上昇を抑えることができる。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、金属板をプレス成形することによって、所定の形状の凹凸構造を有するセパレータを製造する場合には、細かい凹凸構造を、十分な精度で形成することが非常に困難であるという問題を生じる。また、プレス成形を行なう場合には、凹凸構造が形成される領域において、金属板の「曲げ」や「延ばし」が行なわれるため、薄い金属板を用いると、金属板の両面に形成される凹凸構造の形状が互いに制約を受けることになり、凹凸構造を設計する際の自由度が損なわれてしまう。ガスセパレータ上の凹凸構造は、燃料電池内で燃料ガスや酸化ガスの流路を形成するものであるが、このようなガス流路の形状を改良することによって、ガスの利用率を向上させることができる。このようにしてガスの利用率を向上させることで、燃料電池性能を向上させる効果が期待できるが、凹凸構造の設計の自由度が抑えられることにより、このような改良が困難となるおそれがある。プレス成形を行なう際の設計の自由度を確保するためには、用いる金属板を厚くして、両面の凹凸構造の形状が影響を受けにくくするという方法も考えられるが、このようにガスセパレータを厚くすることは、燃料電池全体の大型化を引き起こすため採用し難い。

【0005】本発明の燃料電池用ガスセパレータおよび燃料電池、並びに燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、こうした問題を解決し、金属板をプレスする工程を伴うことなく、凹凸形状に関する十分な設計の自由度を

保持しながら、ガス流路を形成するための凹凸形状を金属製の薄板上に形成することを目的としてなされ、次の構成を採った。

【0006】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】本発明の燃料電池用ガスセパレータは、電解質層および電極を含む部材と共に積層されて燃料電池を構成し、該燃料電池内では、表面に形成された凹凸形状によって、隣接する部材との間でガスの流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって、導電性を有する板状部材からなる基板部と、該基板部上に、導電性を有する物質を直接盛りつけ固着してなる凸部によって、前記凹凸形状を形成する凹凸形状形成部とを備えることを要旨とする。

【0007】以上のように構成された本発明の燃料電池用ガスセパレータは、導電性を有する板状部材からなる基板部と、該基板部上に、導電性を有する物質を直接盛りつけ固着してなる凸部によって、前記凹凸形状を形成する凹凸形状形成部とを備え、電解質層および電極を含む部材と共に積層されて燃料電池を構成する。この燃料電池内では、前記凸部が形成する凹凸形状によって、燃料電池用ガスセパレータと、これに隣接する部材との間でガスの流路が形成される。

【0008】本発明の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、電解質層および電極を含む部材と共に積層されて燃料電池を構成し、燃料電池内では、表面に形成された凹凸形状によって、隣接する部材との間でガスの流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、(a)導電性を有する板状部材からなる基板部を用意する工程と、(b)溶融した導電性物質を、前記基板部上に直接盛りつけて固着し、前記凹凸形状を形成する工程とを備えることを要旨とする。

【0009】このような本発明の燃料電池用ガスセパレータおよび燃料電池用ガスセパレータの製造方法によれば、ガスセパレータ表面に設けられ、燃料電池内でガスの流路を形成するための凹凸形状を、溶融した導電性物質を基板部上に盛りつけることにより形成するため、ガスセパレータ表面に設ける上記凹凸形状の設計の自由度を、十分に確保することができる。すなわち、上記凹凸形状をプレス成形により形成する場合のように、ガスセパレータの一方の面に形成する凹凸形状が、他方の面に形成する凹凸形状に影響を与えることがない。したがって、上記凹凸形状のデザインを自由に改良することができ、燃料電池内部のガスの流路を通過するガスの拡散性を向上させて、燃料電池の性能を高めることが可能となる。

【0010】また、溶融した導電性物質を盛りつけることにより上記凹凸形状を形成するため、プレス成形によって上記凹凸形状を形成する場合に比べて、ガスセパレータを薄型化することができる。すなわち、プレス成形のための厚みを上記基板部に用意しておく必要がない

め、上記基板部を十分に薄型化することができ、これによって、燃料電池全体を小型化することができる。ここで、基板部として金属板を用いるならば、基板部を薄型化しても十分な強度を確保することができる。

【0011】本発明の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記凸部は、その内部に所定の空隙を有することとしてもよい。

【0012】また、本発明の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記凸部は、前記基板部上においてメッシュ状に形成されることとしてもよい。

【0013】また、本発明の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記凸部は多孔質であることとしてもよい。

【0014】以上のように構成された燃料電池用ガスセパレータによれば、セパレータ全体を軽量化することができるため、燃料電池全体を軽量化することができる。従って、燃料電池を、電気自動車の駆動用電源のように、移動用電源として用いる場合には特に有利となる。

【0015】また、上記したように前記凸部を多孔質とする場合には、燃料電池内のガス流路で生じた凝縮水を、この多孔質の凸部によって吸収することができ、凝縮水が流路中に滞留して、ガスの流れを妨げてしまうのを防止することができる。さらに、この多孔質の前記凸部に吸収された凝縮水は、燃料電池の内部の温度に応じて、前記ガスの流路を通過するガス中に蒸発することができるため、ガス流路を通過するガスの湿度を飽和蒸気圧近くに保つことが可能となり、電解質層として固体高分子電解質膜を用いる場合には、電解質膜の乾燥を防ぎ、燃料電池の性能が低下するのを防止することができる。

【0016】本発明の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記凸部は、前記流路を通過する前記ガスを所定の方向に導くために、前記基板部上において前記所定の方向に沿って線状に形成されていることとしてもよい。

【0017】このように、溶融した導電性物質を基板部上に盛りつけることで、任意の形状のガス流路をガスセパレータ上に形成することができる。すなわち、溶融した導電性物質からなる前記凸部を、線状に形成することで、前記凸部によってガス流路を通過するガスを拡散させる他に、セパレータ上に形成されるガス流路の経路を規定する構造を任意の形状で設けることができる。

【0018】本発明の燃料電池は、ガスの供給を受け、電気化学反応によって起電力を得る燃料電池であって、請求項1ないし5いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータを備えることを要旨とする。

【0019】このような燃料電池によれば、本発明の燃料電池用ガスセパレータを用いることで、このガスセパレータとこれに隣接する部材との間で形成されるガス流路の形状の設計の自由度が十分に確保されるため、上記ガス流路の形状の改良を行ない、燃料電池におけるガス利用率の向上を図ることが容易となる。また、用いるガ

スセパレータが、基板部上に熔融導電性物質を盛りつけてなるため、金属板をプレス成形してなるガスセパレータを用いる場合に比べて、より薄いガスセパレータを用いて燃料電池を構成することができ、これによって燃料電池全体を小型化することができる。

#### 【0020】

【発明の実施の形態】以上説明した本発明の構成・作用を一層明らかにするために、以下本発明の実施の形態を実施例に基づき説明する。図1は、本発明の好適な一実施例である燃料電池を構成するセパレータ30の断面の様子を模式的に表わす説明図、図2は、同じくセパレータ30の構成を表わす平面図である。なお、図1は、図2に示したセパレータ30のA-A断面の一部分（セパレータ30の周辺部付近）の様子を表わす。

【0021】本発明の第1実施例のセパレータ30は、金属板からなる基板部22と、この基板部22表面に形成され、熔融導電性物質からなる流路形成部24とを備えており、その表面にはカーボンからなる被覆層26が形成されている。また、セパレータ30を構成する基板部22には、その周辺部、すなわち四辺の近傍のそれぞれにおいて、基板部22をその厚み方向に貫通する4つの孔部が形成されている。この4つの孔部は、セパレータ30において、酸化ガス孔40、41および、燃料ガス孔42、43を形成する（図2参照）。また、基板部22の両面のそれぞれでは、その表面に段差が設けられており、この段差によって凹部が形成されている。すなわち、一方の面（図2に示した面）には凹部45が、もう一方の面には凹部46（図1参照）が形成されている。凹部45は、セパレータ30の一方の面上で酸化ガス孔40と41とを連通させる凹構造であり、凹部46は、セパレータ30の他方の面上で燃料ガス孔42と43とを連通させる凹構造である。流路形成部24は、セパレータ30が備えるそれぞれの凹部45、46上において、規則的に配置された凸状構造として形成されている。被覆層26は、セパレータ30の両方の面において、流路形成部24を含めて、基板部22の表面全体を覆って形成されている。

【0022】基板部22を構成する金属板としては、本実施例ではステンレス板を用いた。また、流路形成部24を形成する熔融導電性物質としても、ステンレスを用いた。本実施例のセパレータ30は、ステンレスのような所定の金属を、ヒータによってこれが熔融する温度にまで加熱し、この熔融した金属を、金属板からなる基板部22上に盛りつけて、流路形成部24を形成してなることを特徴としている。図3は、このセパレータ30の製造工程を表わすフローチャートである。以下に、図3に基づいて、セパレータ30の製造方法について説明する。

【0023】セパレータ30を製造するにはまず、基板部22を形成するための金属板を用意する（ステップS

100）。次に、この金属板を加工して基板部22を形成する（ステップS110）。ここでは、上記金属板を打ち抜いて、酸化ガス孔40、41および燃料ガス孔42、43に相当する孔部を形成すると共に、上記金属板をプレス加工して、凹部45、46に相当する構造を形成した。

【0024】次に、この基板部22のそれぞれの面上に、流路形成部24を形成する（ステップS120）。流路形成部24を設けるには、上記流路形成部24を形成するための金属が熔融する所定の温度（合金の種類によって異なるが、上記したようにステンレスを用いる場合には1000℃程度）にまで加熱可能なヒータと、ヒータによって熔融させた金属を吐出するノズルとを備えた金属盛りつけ装置を用いる。このヒータによって、上記金属を加熱して熔融させると共に、上記ノズルより、予め定めた所定量の熔融金属を吐出させて、基板部22上に熔融金属を盛りつける。図4に、このような金属盛りつけ装置50の構成の概略を示す。この金属盛りつけ装置50が備えるヒータ52には、半円筒形の溝54が所定の間隔で設けられており、この溝54の先端部は、それぞれノズル56となっている。流路形成部24を形成する際には、それぞれの上記溝54に対して所定量の金属が供給され、この金属が溝54内でヒータ52の熱によって熔融され、それぞれのノズル56から、基板部22上の所定の位置に吐出されて盛りつけられる。

【0025】盛りつけられた熔融金属は、基板部22上で冷却されると共に基板部22上に接着されて、流路形成部24が形成される。ここでは、上記ヒータ52に設けられた溝54に、流路形成部24を形成するための金属を所定量送り込むことによって、上記ノズルから所定量の熔融金属を吐出させて盛りつけ、予め定めた形状の流路形成部24を形成している。このような、ヒータおよびノズルを備える装置を用いて熔融金属を盛りつける動作は、電子回路の自動はんだ付け工程に用いられる周知の技術を用いることができる。

【0026】ここで、流路形成部24を設けるためのこのような装置が、セパレータ30の一方の面上に形成されるすべての流路形成部24のそれぞれに対応するノズルを備えることとすれば、セパレータ30の一方の面上に設けられるすべての流路形成部24を、一度に形成することができる。あるいは、流路形成部24が、図2に示すように、前後左右に所定の間隔を置いて規則的に配置されている場合には、上記した流路形成部24を設けるための装置は、セパレータ30の一方の面上に形成される流路形成部24のうちの一列分に相当するノズルを備えることとしてもよい。このような場合には、これらのノズルによって熔融金属を基板部22上に盛りつけながら、これらのノズルと基板部22との相対的な位置を所定の間隔で順次ずらすことによって、流路形成部24を形成することができる。

【0027】上記したように流路形成部24を基板部22の両面に形成すると、次に、流路形成部24を設けた基板部22の表面に、カーボンからなる被覆層26を形成し(ステップS130)、セパレータ30を完成する。本実施例では、被覆層26の形成は、流路形成部24を設けた基板部22の両面に、カーボン粉末を吹き付けることによって行なった。

【0028】このようなセパレータ30を用いて、本実施例の燃料電池は構成される。本実施例の燃料電池は、固体高分子型燃料電池であり、構成単位である単セルを複数積層したスタック構造を有している。図5は、本実施例の燃料電池が備える単セル28の構成を表わす分解斜視図、図6は、単セル28を積層したスタック構造14の外観を表わす斜視図である。以下に、図5および図6に基づいて、本実施例の燃料電池の構成について説明する。

【0029】単セル28は、電解質膜31と、この電解質膜31を両側から挟持してサンドイッチ構造を形成するアノード32およびカソード33(図示せず)と、このサンドイッチ構造をさらに両側から挟持する既述したセパレータ30とによって構成されている(図5参照)。ここで、電解質膜31は、固体高分子材料、例えばフッ素系樹脂により形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜であり、湿潤状態で良好な電気伝導性を示す。本実施例では、ナフィオン膜(デュポン社製)を使用した。電解質膜31の表面には、触媒としての白金または白金と他の金属からなる合金が塗布されている。アノード32およびカソード33は、ガス拡散電極であり、共に炭素繊維からなる糸で織成したカーボクロスにより形成されている。あるいは、このアノード32およびカソード33を、炭素繊維からなるカーボンペーパーまたはカーボンフェルトにより形成する構成、または、発泡金属を用いて形成する構成も好適である。

【0030】図5に示すように電解質膜31、アノード32、カソード33およびセパレータ30を積層して単セル28を形成するときには、セパレータ30上に形成された流路形成部24と凹部45、46は、隣接するガス拡散電極との間でガス流路を形成する。すなわち、凹部45と凹部45上に設けられた流路形成部24とは、隣接するカソード33の表面との間に単セル内酸化ガス流路を形成し、凹部46と凹部46上に設けられた流路形成部24とは、隣接するアノード32の表面との間に単セル内燃料ガス流路を形成する。

【0031】また、単セル28を積層してスタック構造14を組み立てたときには、各セパレータ30が備える酸化ガス孔40、41および燃料ガス孔42、43は、それぞれ、スタック構造14内部をその積層方向に貫通する酸化ガス供給マニホールド、酸化ガス排出マニホールド、燃料ガス供給マニホールド、燃料ガス排出マニホールドを形成する。スタック構造14内に形成されたこ

れらガス流路内でのガスの流れについては、後に説明する。

【0032】以上説明した各部材を備えるスタック構造14を組み立てるときには、セパレータ30、アノード32、電解質膜31、カソード33、セパレータ30の順序で順次重ね合わせる。さらに、その両端に集電板36、37、絶縁板38、39、エンドプレート80、85を順次配置して図6に示すスタック構造14を完成する。

【0033】集電板36、37は緻密質カーボンや銅板などガス不透過な導電性部材によって形成され、絶縁板38、39はゴムや樹脂等の絶縁性部材によって形成され、エンドプレート80、85は剛性を備えた鋼等の金属によって形成されている。また、集電板36、37にはそれぞれ出力端子36A、37Aが設けられており、スタック構造14によって構成される燃料電池で生じた起電力を出力可能となっている。なお、集電板36、絶縁板38およびエンドプレート80には、スタック構造14を構成したときに、セパレータ30が備える酸化ガス孔40、41、燃料ガス孔42、43と対応する位置に、これらの孔部と重なってガス流路を形成可能となる4つの孔構造がそれぞれ設けられている。例えば、エンドプレート80には、酸化ガス孔40、41、燃料ガス孔42、43のそれぞれに対応して、孔部81~84が設けられている(図6参照)。

【0034】スタック構造14からなる燃料電池を動作させるときには、エンドプレート80が備える孔部83と図示しない燃料ガス供給装置とが接続され、水素リッチな燃料ガスが燃料電池内部に供給される。同様に、燃料電池を動作させるときには、孔部81と図示しない酸化ガス供給装置とが接続され、酸素を含有する酸化ガス(空気)が燃料電池内部に供給される。ここで、燃料ガス供給装置と酸化ガス供給装置は、それぞれのガスに対して所定量の加湿および加圧を行なって燃料電池に供給する装置である。また、燃料電池を動作させるときには、孔部84と図示しない燃料ガス排出装置とが接続されると共に、孔部82と図示しない酸化ガス排出装置とが接続され、これらの装置によって、燃料ガスおよび酸化ガスが燃料電池外に排出される。

【0035】スタック構造14を構成するときの各部材の積層順序は既述した通りであるが、電解質膜31の周辺部には、セパレータ30と接する領域において所定のシール部材が設けられる(図示せず)。このシール部材は、各単セル内部から燃料ガスおよび酸化ガスが漏れ出すのを防ぐと共に、スタック構造14内において燃料ガスと酸化ガスとが混合してしまうのを防止する役割を果たす。

【0036】以上説明した各部材からなるスタック構造14は、その積層方向に所定の押圧力がかかった状態で保持され、燃料電池が完成する。スタック構造14を押

圧する構成については、本発明の要部とは関わらないため図示は省略した。スタック構造 14 を押圧しながら保持するには、スタック構造 14 をボルトとナットを用いて締め付ける構成としても良いし、あるいは所定の形状のスタック収納部材を用意して、このスタック収納部材の内部にスタック構造 14 を収納した上でスタック収納部材の両端部を折り曲げて、スタック構造 14 に押圧力を作用させる構成としても良い。

【0037】また、図 2 では記載しなかったが、本実施例のセパレータ 30 は、酸化ガスが通過するガスマニホールドを形成するための酸化ガス孔 40、41、および、燃料ガスが通過するガスマニホールドを形成するための燃料ガス孔 42、43 の他に、冷却水が通過する冷却水マニホールドを形成するための孔部も備えている。燃料電池で進行する電気化学反応では、燃料電池に供給される燃料中の化学エネルギーが電気エネルギーに変換されるが、化学エネルギーから電気エネルギーへの変換は完全に行なわれるわけではなく、電気エネルギーに変換されなかった残りのエネルギーは熱として放出される。このように、燃料電池は発電と共に発熱を続けるため、燃料電池の運転温度を望ましい範囲内とするために、通常は燃料電池内に冷却水の流路を設け、燃料電池内に冷却水を通過させることによって余分な熱を取り除いている。燃料電池内部をその積層方向に貫通して設けられる冷却水マニホールドを形成するための孔部は、セパレータ 30 を製造する際に、金属板を打ち抜いて酸化ガス孔 40、41、燃料ガス孔 42、43 と同時に形成される（図 3 ステップ S110 参照）。

【0038】次に、以上のような構成を備えた燃料電池における燃料ガスおよび酸化ガスの流れの様子を説明する。既述した燃料ガス供給装置から供給された燃料ガスは、セパレータ 30 が備える燃料ガス孔 42 が形成する燃料ガス供給マニホールドを介して、各単セル 28 に分配される。各単セル 28 に分配された燃料ガスは、凹部 46 および流路形成部 24 と、アノード 32 とによって形成される単セル内燃料ガス流路を通過しつつ、ガス拡散電極であるアノード 32 を介して、電解質膜 31 に塗布された触媒上で進行する電気化学反応に供される。このとき、単セル内燃料ガス流路を通過する燃料ガスは、流路形成部 24 の側面に衝突することによって効果的に拡散され、これによって充分量の燃料ガス（水素）が上記触媒にまで到達する。単セル内燃料ガス流路を通過した燃料ガスは、燃料ガス孔 43 が形成する燃料ガス排出マニホールドに集合して、燃料ガス排出装置に排出される。

【0039】また、酸化ガス供給装置から供給された酸化ガスは、セパレータ 30 が備える酸化ガス孔 40 が形成する酸化ガス供給マニホールドを介して、各単セル 28 に分配される。各単セル 28 に分配された酸化ガスは、凹部 45 および流路形成部 24 と、カソード 33 と

によって形成される単セル内酸化ガス流路を通過しつつ、ガス拡散電極であるカソード 33 を介して、電解質膜 31 に塗布された触媒上で進行する電気化学反応に供される。ここでも、単セル内酸化ガス流路を通過する酸化ガスは、流路形成部 24 の側面に衝突することによって、効果的に拡散される。単セル内酸化ガス流路を通過した酸化ガスは、酸化ガス孔 41 が形成する酸化ガス排出マニホールドに集合して、酸化ガス排出装置に排出される。

【0040】以上のように構成された本実施例のセパレータ 30 およびセパレータ 30 の製造方法によれば、セパレータ 30 上に設けられ、単セル内ガス流路を形成するための凸構造である流路形成部 24 は、基板部 22 上に熔融金属を盛りつけることによって形成するため、セパレータ 30 の両面のそれぞれに形成される流路形成部の形状が互いに制約を受けることがなく、流路形成部の設計に関する自由度を十分に確保することができる。流路形成部の設計に関わる自由度が増すことによって、流路形成部の形状および配置を効果的に改良して、単セル内ガス流路から電解質膜方向へのガスの拡散性を向上させ、本実施例のセパレータ 30 を備える燃料電池におけるガスの利用率を向上させることが可能となる。

【0041】また、本実施例のセパレータ 30 の製造方法によれば、ヒータおよびノズルを備えた金属盛りつけ装置を用いて熔融金属を盛りつけることによって、流路形成部 24 を形成するため、従来知られるセパレータの製造方法、例えば、金属板や炭素材料をプレス成形する方法や、機械加工による削り出しなどの方法に比べて容易に、また充分な精度で、細かい流路形成部 24 を形成することができる。すなわち、ヒータで加熱して熔融した金属を盛りつけて、基板部 22 上に流路形成部 24 を固着させるという簡素な製造工程でセパレータを製造することができる。また、金属板をプレス成形する場合のように、金属の曲げや延ばしを考慮する必要がないため、基板部 22 を形成するために十分に薄い金属板を用いることができ、燃料電池全体を小型化することができる。

【0042】上記した実施例では、基板部 22 を構成する金属板も、流路形成部 24 を形成するために用いる熔融金属も、共にステンレスを用いたが、異なる材料を用いて基板部 22 および流路形成部 24 を形成することとしてもよい。基板部 22 を構成する金属板は、充分な導電性および強度と、所定の耐食性を有していれば他の材料によって形成することとしてもよく、流路形成部 24 を形成する熔融金属としては、充分な導電性および所定の耐食性を有していれば他の材料を用いることとしても良い。ここで、流路形成部 24 を形成する金属としては、既述した金属盛りつけ装置が備えるヒータを用いて加熱して熔融させることができる金属であればよい。また、基板部 22 を構成する金属板は、熔融した上記金属



を盛りつける際に、この溶融した金属の温度に耐える材料で形成されていればよい。特に、本実施例のように、基板部22と流路形成部24とを同じ材料によって形成すれば、両者の間の接触抵抗を低減することができ、このようなセパレータ30を用いて構成した燃料電池の内部抵抗を抑えることができる。

【0043】上記実施例のセパレータ30は、その表面に、カーボンからなる被覆層26を形成しているため、非常に優れた耐食性を実現することができる。カーボンは、導電性、耐食性共に非常に優れており、セパレータ30を被覆する材料として優れている。特に、上記実施例の燃料電池では、セパレータ30に隣接して配設するガス拡散電極（アノード32およびカソード33）もカーボンによって形成されているため、両者の間の接触抵抗が小さくなるという効果も得られる。さらに、セパレータ30とガス拡散電極との接触部が共にカーボンからなることによって、カーボンと金属とを接触させる場合のように部分的に電池を形成してしまうおそれがなく、燃料電池の使用中にセパレータ表面の耐食性が低下してしまうおそれもない。

【0044】ここで、セパレータ30の耐食性および燃料電池の内部抵抗が、十分に許容範囲となるならば、上記被覆層26を、他の材料、例えば、チタンやニッケルなど耐食性に優れた金属によって形成することとしてもよい。あるいは、基板部22や流路形成部24を、上記したように十分に耐食性に優れた材料で形成することとすれば、被覆層26は設けないこととしても良い。なお、流路形成部24を形成する金属として、既述したステンレスやチタン、ニッケルを含む合金を用いることとすれば、ある程度の耐食性を実現することができると共に、合金化のために用いる金属によっては、上記ステンレスやチタン、ニッケルよりも低い温度で金属を溶融させて、盛りつけの動作を行なうことが可能となる。

【0045】さらに、基板部22は、金属以外の部材によって形成することとしても良く、溶融金属を盛りつけることによりその表面に溶融金属を充分な強度で接着することができればよい。あるいは、溶融金属との間で充分な接着性を確保するために、溶融金属を盛りつけるのに先立って、基板部22の表面にさらに所定の表面処理を施すこととしても良い。また、流路形成部24も、充分な導電性を有すると共に、基板部22上に充分な強度で接着可能であり、充分な耐食性を確保することができるならば、金属以外の溶融導電性物質によって形成することとしても良い。基板部22あるいは流路形成部24を形成する金属以外の材料としては、例えば導電性樹脂を用いることができ、この中から上記した条件に適合するものを選択すればよい。

【0046】上記第1実施例では、金属板を加工して凹部45、46などの構造を有する基板部22を形成する際に、プレス成形を行なうこととしたが、基板部22の

凹凸形状を、他の方法によって形成することとしても良い。例えば、鋳造や鍛造などによって基板部22を形成することとしてもよい。

【0047】また、基板部22において、対向する燃料ガス孔あるいは酸化ガス孔を連通させる流路を形成するために、凹部45、46のような凹部を形成する代わりに、溶融金属の盛りつけにより形成した凸構造を形成することとしてもよい。このような構成の一例を、セパレータ130として図7に示す。なお、図7に示したセパレータ130は、既述したセパレータ30と同様の燃料電池に用いられるセパレータであり、セパレータ30と共通する構成については同じ部材番号を付して詳しい説明は省略する。

【0048】セパレータ130は、流路形成部24と同様に溶融金属を盛りつけることによって、セパレータ30において凹部45、46が形成される境界となる位置と対応する位置に、凸構造である流路形成部128を設けて、この凸構造によって、対向する燃料ガス孔あるいは酸化ガス孔の間にガスを導き、単セル内ガス流路を形成している。なお、図7では、セパレータ130の一方の面側だけを示しており、酸化ガス孔40、41を連通させるガス流路を形成する流路形成部128が表わされているが、セパレータ130の裏面にも、燃料ガス孔42、43を連通させるガス流路を形成する同様の凸構造である流路形成部128が設けられている。

【0049】このような流路形成部128は、既述した流路形成部24と同様に、ヒータおよびノズルを備える金属盛りつけ装置を用いて、平板上の基板部122上に溶融金属を盛りつけることによって形成することができる。このような構成とすることによって、金属板をプレス成形する工程をなくすることができるため、製造工程を簡素化することができる。さらに、凹部を形成するためのプレス成形も不要となるため、より薄い金属板を用いてセパレータ30を形成することができ、燃料電池全体をさらに小型化することが可能となる。

【0050】また、溶融金属を盛りつけた凸構造によって、上記した単セル内ガス流路を通過するガスを拡散させるための流路形成部24や、単セル内ガス流路を形成する領域を規定する流路形成部128を形成するほかに、単セル内ガス流路の形状を規定するための凸構造を形成することとしても良い。この場合には、縦横に走る線状に溶融金属の盛りつけを行なうことにより、任意の形状の単セル内ガス流路を形成することができる。このようなセパレータの一例を、セパレータ230として図8に示す。なお、セパレータ230において、セパレータ30およびセパレータ130と共通する部分には同じ部材番号を付して詳しい説明は省略する。

【0051】図8は、セパレータ230の構成を表わす平面図である。セパレータ230は、既述したセパレータと同様に、単セル内ガス流路を通過するガスを攪拌す



るための流路形成部24を備えるほかに、これと同様に溶融金属を盛りつけて形成した流路形成部228を備えている。流路形成部228は、セパレータ230上に置いて折れ曲がった流路を形成しており、セパレータ230を用いて形成した燃料電池では、それぞれの単セルに分配された酸化ガスは、この流路形成部228が形成する折れ曲がった形状の流路を通過し、酸化ガス孔240が形成する酸化ガス供給マニホールドから、酸化ガス孔241が形成する酸化ガス排出マニホールドへ導かれる。なお、図8ではセパレータ230の一方の面だけを10示したが、他方の面にも同様の流路形成部228が設けられている。他方の面の流路形成部228は、燃料ガス孔242と243とを連通させ、単セル内で燃料ガスを折れ曲がった経路で導く単セル内燃料ガス流路を形成する。このように、基板部222上に溶融金属を盛りつけることにより、ガスを攪拌するための凸構造を形成する以外に、単セル内ガス流路の形状を任意に設けることができる。

【0052】なお、図7に示したセパレータ130および図8に示したセパレータ230では記載を省略したが、これらのセパレータのように、溶融金属を盛りつけた凸構造によって単セル内ガス流路の形状を規定する場合には、さらに、酸化ガス孔および燃料ガス孔の周辺にも、溶融金属を盛りつけた凸構造を設けることとすればよい。このように、酸化ガス孔および燃料ガス孔の周辺にも、溶融金属を盛りつけた凸構造を形成するならば、基板部をプレス成形して凹凸を形成することなしに、この凸構造によって、セパレータとこれに隣接する部材との間のガスシール性を十分に確保するための構造を設けることが可能となる。

【0053】上記したように、基板部上に溶融金属を盛りつけて、種々の形状の流路形成部を設けるときには、用いる溶融金属の種類に応じて、盛りつけに用いるノズルの形状およびノズルが備えるヒータの形状を定めることが望ましい。また、金属を熔融させる際のヒータの温度を調節することで、盛りつけの際の溶融金属の粘性を調節することができる。図9は、盛りつけられた金属の形状を表わす断面模式図である。すなわち、基板部上に溶融金属の盛りつけを行なうと、盛りつけられた金属は、底面側に比べて頭頂部の方が細く尖るという形状を呈するが(図9(A)参照)、ヒータの温度を下げて溶融金属の粘性を増すことによって、盛りつけられた金属の頭頂部が底面側に比べて細く尖った形状になるのを抑えることができる(図9(B)参照)。溶融金属の粘性を高めて、盛りつけた金属の形状をこのように変え、と、溶融金属によって形成される流路形成部と、セパレータに隣接する部材(ガス拡散電極)との接触面積を増し、セパレータとこれに隣接する部材との間の接触抵抗を低減することができる。

【0054】また、溶融金属を基板部上に盛りつけた後

で、盛りつけた溶融金属の頭頂部を機械的に削り取り、流路形成部の頭頂部を機械的に平らに形成することとしてもよい。このようにすることによって、流路形成部の頭頂部を十分に平坦化して、隣接する部材との間の接触面積を十分に確保することができる。また、頭頂部を削る工程を加えることにより、各流路形成部の高さを揃えることができる。盛りつけの際の溶融金属の粘性を調節し、所定量の溶融金属を盛りつけることで、十分な精度で、均一な高さの流路形成部を形成することが可能であるが、上記したように、さらに機械加工を加えて、流路形成部の高さの均一性の精度を高めることとしてもよい。

【0055】基板部上に溶融金属を盛りつけて流路形成部を形成する際に、溶融金属をメッシュ状となるように盛りつける構成も好適である。このような構成を第2実施例として以下に示す。図10は、第2実施例のセパレータ330の表面に形成された流路形成部324の様子を表わす説明図である。なお、図10では、基板部322上に流路形成部324が形成された領域のみを表わしているが、このセパレータ330は、第1実施例のセパレータ30と同様に、酸化ガス孔40、41、燃料ガス孔42、43を備えており、流路形成部24と同様にこれらの孔を連通させる凹部45、46上に、図10に示した流路形成部324が形成されている。

【0056】セパレータ330では、図10に示すように、溶融金属がメッシュ状となるように盛りつけることによって流路形成部424を形成している。このような流路形成部324は、溶融金属が十分な粘性を示すように金属盛りつけ装置のヒータの温度を調節した上で、金属盛りつけ装置が備えるノズルを波形に上下させながら移動させつつ、溶融金属を吐出させることによって、基板部322上に形成する。なお、図10では記載を省略しているが、流路形成部424において、既述した実施例の流路形成部と同様に、被覆層をその表面に設けることとすれば、流路形成部424の耐食性を向上させることができる。

【0057】以上のように構成された第2実施例のセパレータ330によれば、既述したセパレータ30と同様の効果に加えて、さらに以下のような効果を奏する。すなわち、流路形成部324がメッシュ状に形成されており、流路形成部424の内部に所定の空隙が設けられているため、セパレータ330全体をより軽量化することができる。したがって、このようなセパレータ330を用いることで、燃料電池全体をより軽量化することができる。燃料電池を軽量化できることは、燃料電池を、電気自動車の駆動用電源として搭載する場合のように、重量に制限のある移動用電源として用いる場合には特に有利となる。なお、メッシュ状に形成される流路形成部324の形状は、図10に示した形状に限るものではない。既述した金属盛りつけ装置が備えるノズルから、溶

融金属を吐出させて盛りつけることによって形成可能な形状であればよく、内部に所定の空隙を設けることで、上記した効果を得ることができる。

【0058】なお、上記第2実施例では、熔融金属を盛りつける際のノズルの動作と熔融金属の粘性とを調節することによって、流路形成部324をメッシュ状に形成することとしたが、熔融金属の盛りつけに先立って、まず基板部上に所定の充填材を盛りつけ、この充填材の上に熔融金属を盛りつけた後に、充填材を除去することによって、内部に所定の空隙を有する流路形成部を形成することとしてもよい。図11は、このようなセパレータ430の製造工程を表わす説明図である。

【0059】セパレータ430を製造するには、まず、第1実施例のセパレータ30における基板部22と同様の基板部422を用意し、この基板部422上に、充填部421を形成する(図11(A)参照)。この充填部421は、既述した実施例における熔融金属の盛りつけの動作と同様の動作によって、基板部422上に樹脂を盛りつけたものである。なお、ここで用いる樹脂は、後述する流路形成部424の盛りつけの動作の際の熔融金属の温度に対する耐熱性を有し、さらに、流路形成部424を形成した後にこの充填部421を除去する操作が可能なものである。

【0060】基板部422上に充填部421を形成すると、次に、既述した実施例と同様に熔融金属を盛りつけることによって、それぞれの充填部421上に、流路形成部424を形成する(図11(B)参照)。流路形成部424を形成すると、充填部421を除去する処理を行なって、セパレータ430を完成する(図11(C)参照)。ここで、充填部421の除去は、充填部421を構成する樹脂の種類に応じた溶剤を用いて、充填部421を構成する樹脂を溶解させるという化学処理によって行なうこととすればよい。

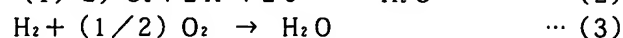
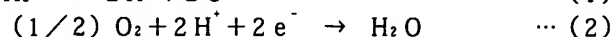
【0061】また、上記したセパレータ430では、充填部421は、流路形成部424の形成後に除去することとしたが、この充填部を導電性材料によって形成するならば、充填部の除去は行なわないこととしてもよい。例えば、充填部421を導電性樹脂によって形成し、この導電性樹脂の導電性がセパレータの構成材料として充分であれば、充填部421を設けたままセパレータ430を完成させることとしてもよい。このような場合にも、流路形成部424の内部が、流路形成部424を構成する金属よりも軽量の樹脂によって形成されるため、セパレータ430全体をより軽量化することができる。このように、セパレータ430において、充填部421を除去する場合も除去しない場合も、第2実施例のセパレータ330と同様に、セパレータを軽量化することに\*

\* による所定の効果を得ることができる。なお、流路形成部424の表面に、第1実施例のセパレータ30における被覆層26と同様の被覆層を設ければ、セパレータの耐食性をさらに向上させることができる。

【0062】さらに、セパレータを軽量化する構成として、流路形成部を多孔質の金属によって形成することとしてもよい。このような構成を第3実施例として以下に説明する。第3実施例のセパレータ530の構成を、図12に表わす。セパレータ530は、第1実施例のセパレータ30と同様に、基板部22と同様の基板部522上に、熔融金属を盛りつけることによって流路形成部524を形成しているが、ここでは、第1実施例とは異なり、流路形成部524を多孔質の金属によって形成する。流路形成部524を多孔質にするために、本実施例では、予め、流路形成部524を形成するための金属に、第2の成分を混合している。金属に混合する第2の成分は、流路形成部524を形成する金属と共にこの金属が熔融する第1の温度に昇温すると、上記金属と十分に均一に混合可能であって、さらに第1の温度よりも高い第2の温度に上昇させることによって、上記金属中に分散した状態で蒸発させる(あるいは分解して気化させる)ことができるものである。したがって、上記第2の成分と上記熔融金属とが混合された状態で、この第2の成分が蒸発する温度に昇温して熔融金属を基板部上に盛りつけることによって、内部に多数の気泡が形成された状態で熔融金属を盛りつけることができ、これによって、多孔質な流路形成部524を形成することができる。

【0063】以上のように形成されたセパレータ530によれば、既述した実施例と同様に、熔融金属を盛りつけることによって流路形成部を形成するため、流路形成部の形状の設計の自由度が確保されると共に、セパレータを薄型化できるという効果と、流路形成部が多孔質であることによって、第2実施例と同様にセパレータが軽量化できるという効果の他に、さらに以下のような効果を奏する。すなわち、流路形成部524が多孔質であることによって、この多孔質の流路形成部によって、単セル内ガス流路で生じた生成水を吸収したり、吸収した生成水をガス中に蒸発させて単セル内ガス流路を通過するガスの湿度を調節したりすることが可能となる。ここで、燃料電池内で生じる生成水およびガスにおける湿度調節について説明する。燃料電池は、アノード側に水素を含有する燃料ガスの供給を受け、カソード側に酸素を含有する酸化ガスの供給を受けて、電気化学反応によって起電力を得るが、以下に、この電気化学反応を示す。

【0064】



【0065】(1)式はアノードにおける反応、(2)式はカソードにおける反応を表わし、燃料電池全体では(3)式に示す反応が進行する。このように、電気化学反応が進行する際には、カソード側において水が生じる。カソード側で生じた水は、単セル内酸化ガス流路を通過する酸化ガス中に蒸発するが、燃料電池内を通過する酸化ガスの温度が部分的に低下したときなどは、酸化ガスの飽和蒸気圧が低下して生成水が凝縮することがある。このように凝縮した生成水が、単セル内酸化ガス流路に滞留すると、ガスの流路を塞ぎ、電気化学反応が円滑に進行するのを妨げてしまうおそれがある。本実施例のように、流路形成部524を多孔質とすれば、単セル内酸化ガス流路内で生成水が凝縮しても、これを多孔質の流路形成部524によって吸収することができ、凝縮した生成水がガス流路を塞いでしまうのを防止することができる。

【0066】このような効果は、単セル内酸化ガス流路だけでなく、単セル内燃料ガス流路においても得ることができる。上記したように、電気化学反応によって生成水が生じるのはカソード側だけであるが、アノード側に供給する燃料ガスは、電解質膜の乾燥を防ぐ目的で、通常は加湿を行なっている。このように加湿を行なった上で燃料ガスを供給することにより、単セル内燃料ガス流路においても、凝縮水が生じるおそれがあるが、流路形成部524を多孔質とすることによって、生じた凝縮水を吸収することができ、凝縮水によって燃料ガスの流れが妨げられるのを防止することができる。

【0067】さらに、多孔質の流路形成部524は、吸収した凝縮水をガス中に蒸発させることによって、単セル内ガス流路を通過するガスの湿度が充分となるように調節するという機能を実現することが可能である。燃料電池では、各電極に供給されるガス流量が多いときには、アノード側はもとより、生成水が生じるカソード側においても、ガスによって電解質膜から水分が持ち去られることがあり、電解質膜が乾いて電池性能が低下してしまうのを防ぐために、単セル内ガス流路を通過するガスは充分な湿度を有していることが望ましい。本実施例では、ガス流路中に生じた余分な凝縮水が流路形成部524に吸収されており、この吸収された凝縮水は、燃料電池内の温度に応じた飽和蒸気圧までは、単セル内ガス流路を通過するガス中に蒸発してゆく。したがって、流路形成部524を多孔質として、生じた凝縮水をこの流路形成部524に吸収させることによって、単セル内ガス流路を通過する燃料ガスおよび酸化ガスの湿度を、常に、飽和蒸気圧に近い状態に保ち、電解質膜が乾燥してしまうのを防ぐことができる。このように、流路形成部524を多孔質にする場合には、流路形成部524を形成するときに熔融金属に混合する既述した第2の成分の種類や量などを調節して、熔融金属内に形成される気泡の大きさや量を適当に調節することで、単セル内ガス流

路中の凝縮水の吸収や、ガスの湿度の調節を良好に行なうことが可能となる。

【0068】なお、既述した実施例では、流路形成部はセパレータの両面に形成することとしたが、スタック構造端部に配設するセパレータでは、その一方の面にのみ流路形成部を設けることとしてもよい。また、セパレータにおいて、その一方の面上には、上記した燃料ガスまたは酸化ガスの通過する単セル内ガス流路を形成する流路形成部を設けることとし、他方の面上には、既述した冷却水の流路を形成するための凹凸構造を形成することとしてもよい。このような場合にも、熔融金属を盛りつけて流路形成部を設けることによる所定の効果を得ることができる。

【0069】また、上記した実施例のセパレータは、固体高分子型燃料電池を構成するために用いたが、異なる種類の燃料電池を構成するために用いることとしてもよい。燃料電池の動作条件下で安定な材料によってセパレータが構成されていれば、既述した実施例と同様の効果を得ることができる。

【0070】以上本発明の実施例について説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々なる状態で実施し得ることは勿論である。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の好適な一実施例であるセパレータ30の断面の様子を模式的に表わす説明図である。

【図2】セパレータ30の構成を表わす平面図である。

【図3】セパレータ30の製造工程を表わすフローチャートである。

【図4】金属盛りつけ装置の構成を表わす説明図である。

【図5】単セル28の構成を表わす分解斜視図である。

【図6】単セル28を積層したスタック構造14の外観を表わす斜視図である。

【図7】セパレータ130の構成を表わす平面図である。

【図8】セパレータ230の構成を表わす平面図である。

【図9】基板部上に盛りつけられた金属の様子を表わす断面模式図である。

【図10】セパレータ330の表面に形成された流路形成部324の様子を表わす説明図である。

【図11】セパレータ430の製造工程を表わす説明図である。

【図12】セパレータ530の構成を表わす説明図である。

#### 【符号の説明】

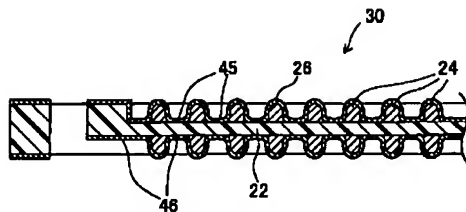
14…スタック構造

22, 122, 222, 322, 422, 522…基板部

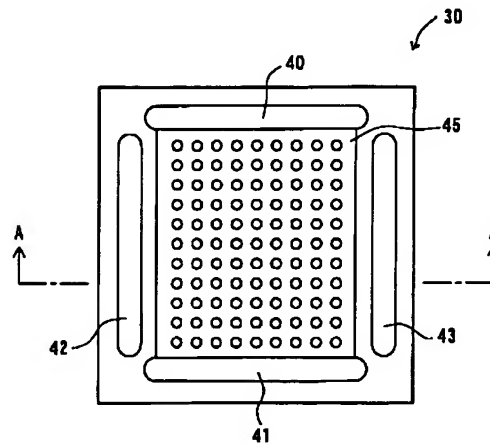
24, 324, 424, 524…流路形成部  
 26…被覆層  
 28…単セル  
 30, 130, 230, 330, 430, 530…セパ  
 レータ  
 31…電解質膜  
 32…アノード  
 33…カソード  
 36, 37…集電板  
 36A, 37A…出力端子  
 38, 39…絶縁板  
 40, 41…酸化ガス孔

\* 42, 43…燃料ガス孔  
 45, 46…凹部  
 50…金属盛りつけ装置  
 52…ヒータ  
 54…溝  
 56…ノズル  
 80, 85…エンドプレート  
 81~84…孔部  
 128, 228…流路形成部  
 10 240, 241…酸化ガス孔  
 242, 243…燃料ガス孔  
 \* 421…充填部

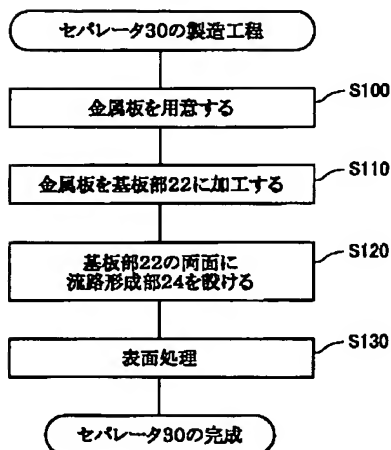
【図1】



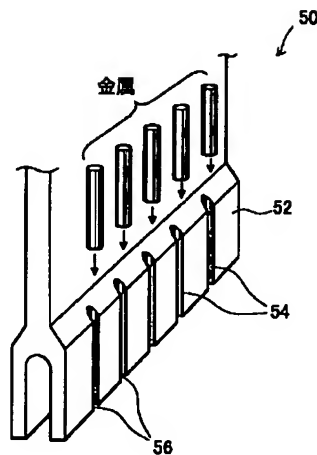
【図2】



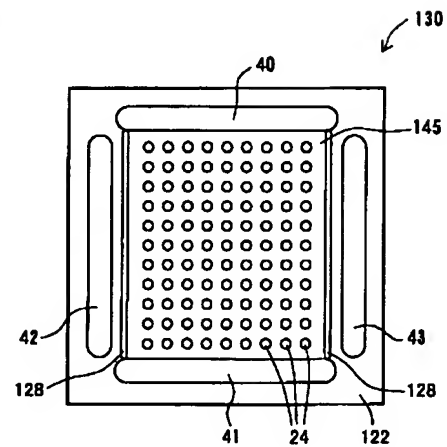
【図3】



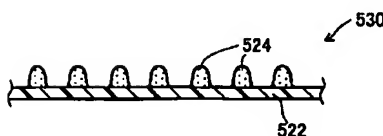
【図4】



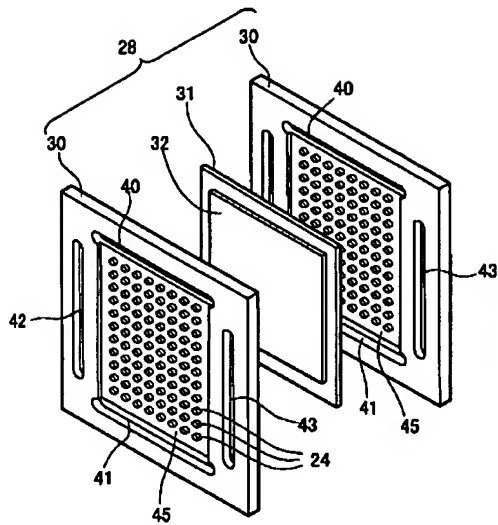
【図7】



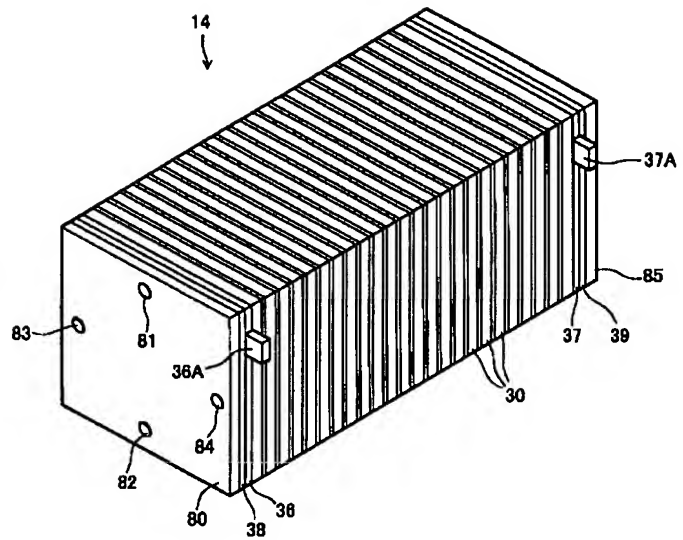
【図12】



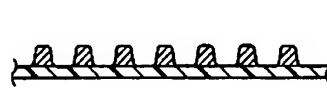
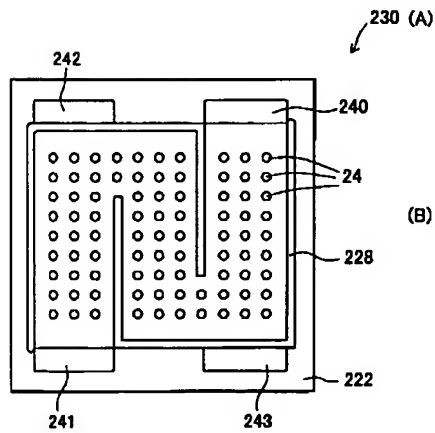
【図5】



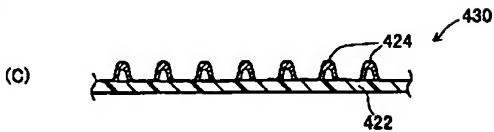
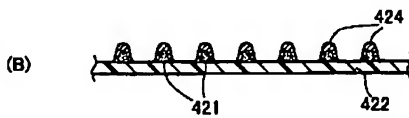
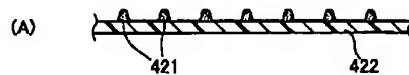
【図6】



【図8】



【図11】



【図10】

